

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003年12月24日 (24.12.2003)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 03/106582 A1(51) 国際特許分類: C09J 201/00, 163/00, 11/06,  
7/00, C09K 3/10, H05B 33/04, 33/14

特願 2002-362714

2002年12月13日 (13.12.2002) JP

特願 2003-3572 2003年1月9日 (09.01.2003) JP

(21) 国際出願番号: PCT/JP03/07637

(22) 国際出願日: 2003年6月17日 (17.06.2003)

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒530-8565 大阪府 大阪市 北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2002-175965 2002年6月17日 (17.06.2002) JP

特願 2002-213909 2002年7月23日 (23.07.2002) JP

特願 2002-244204 2002年8月23日 (23.08.2002) JP

特願 2002-269069 2002年9月13日 (13.09.2002) JP

特願 2002-307393

2002年10月22日 (22.10.2002) JP

特願 2002-344510

2002年11月27日 (27.11.2002) JP

(72) 発明者; および

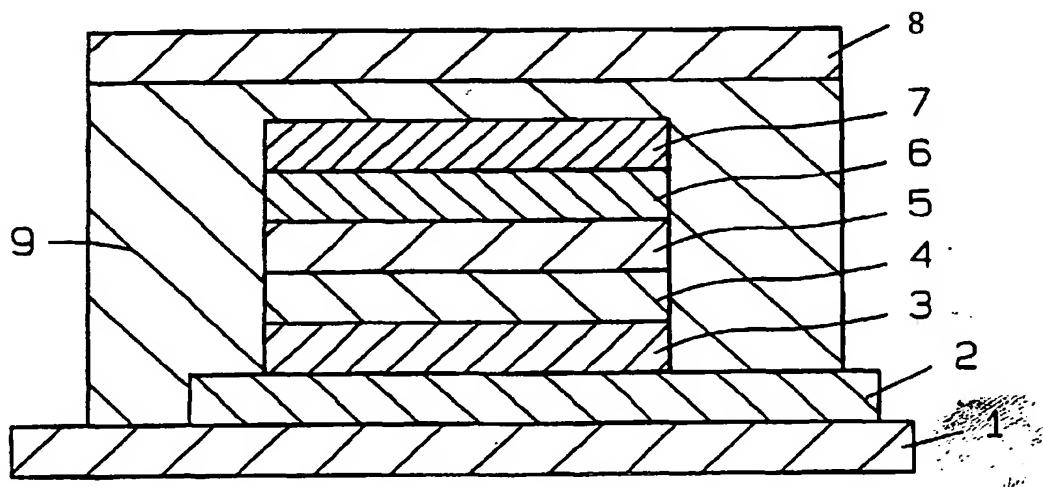
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 島津 宏宣 (SHI-MAZU, Hironobu) [JP/JP]; 〒618-8589 大阪府 三島郡 島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 七里 徳重 (SHICHIRI, Tokushige) [JP/JP]; 〒618-8589 大阪府 三島郡 島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 安富 康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大阪府 大阪市 淀川区西中島5丁目4番20号 中央ビル Osaka (JP).

[続葉有]

(54) Title: ADHESIVE FOR SEALING ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND USE THEREOF

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤及びその応用



(57) Abstract: An adhesive for sealing an organic electroluminescent element which comprises a compound capable of undergoing a light cationic polymerization and a light cationic polymerization initiator, wherein a curing reaction is started by the irradiation with a light and proceeds also after the blockage of a light as a dark reaction; a pressure sensitive adhesive tape for sealing an organic electroluminescent element; a double side pressure sensitive adhesive tape for sealing an organic electroluminescent element; a method for sealing an organic electroluminescent element; and an organic electroluminescent element. The adhesive can be advantageously used for sealing an organic electroluminescent element with no danger of deterioration by light or heat.

[続葉有]

BEST AVAILABLE COPY



WO 03/106582 A1



(81) 指定国 (国内): CA, CN, JP, KR, US.

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR).

添付公開書類:

- 国際調査報告書
- 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

(57) 要約: 本発明の目的は、有機エレクトロルミネッセンス素子を光又は熱により劣化させることなく封止することができる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法、及び、有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することである。本発明は、光カチオン重合性化合物と光カチオン重合開始剤とを含有し、光照射により硬化反応が開始し、光を遮断した後にも暗反応で硬化反応が進行する光カチオン重合性接着剤からなる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤である。

## 明細書

有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法、及び、有機エレクトロルミネッセンス素子

## 技術分野

有機エレクトロルミネッセンス素子を光又は熱により劣化させることなく封止することができる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法、及び、有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

## 背景技術

有機エレクトロルミネッセンス材料（以下、有機EL材料という）を発光層に用いた電界発光素子（以下、有機EL素子という）は、通常、基板上に設けられた一の電極上に、正孔注入層、発光層及び電子注入層が、順次積層され、更にもその上に他の電極が設けられた薄膜構造体からなる。図1に、このような薄膜構造体の一例を模式的に示す断面図を示した。図1に示した薄膜構造体20は、基板1上に、陽極2、正孔注入層3及び正孔輸送層4からなる正孔注入電極と、有機薄膜5（発光層）と、電子注入層6及び陰極7からなる電子注入電極とが、順次、積層された構造となっている。なお、薄膜構造体の構造は、図1に示す構造に限定されず、例えば、少なくとも陽極2及び陰極7の間に有機薄膜5が形成されていけばよいが、素子の性能を向上させるという点から、図1に示す薄膜構造体20のように、正孔注入層3、正孔輸送層4及び電子注入層6が形成された構造が好ましい。

このような薄膜構造体からなる有機EL素子は、自己発光を行うため視認性がよく、固体素子であるため耐衝撃性に優れ、直流低電圧駆動素子を実現するもの

として注目を集めている。

かつて有機EL素子は、ZnS:Mn系の無機薄膜素子等の無機薄膜素子（有機分散型無機EL素子）と比較して、長期保存信頼性（寿命）に欠ける等の実用性を阻む問題点を有していた。しかし、近年では、有機薄膜層を形成する有機材料の改良、カソード金属材料の改良、パッシベーション（ガスバリア膜）の研究が進み、環境放置信頼性試験においてもその特性が改善されてきており、素子駆動時の半減寿命も1万時間を超える報告がなされている。

しかし、有機EL素子を構成する有機薄膜（発光層）、正孔注入層及び電子注入層の材料である発光材料、正孔注入材料及び電子注入材料等の有機固体は、水分や酸素等に侵されやすいという問題が完全に解決されたとはいえない。また、有機固体の上下に設けられている対向電極は、酸化により特性が劣化するため、有機EL素子を大気中で駆動させると発光特性が急激に劣化する。従って、実用的な有機EL素子を得るためには、有機固体に水分や酸素が侵入しないように、また、対向電極が酸化されないように、有機固体及び対向電極を大気と遮断して長寿命化を図る必要がある。

有機固体及び対向電極を大気と遮断する方法としては、例えば、特開平9-148066号公報に、薄膜構造体部分を金属又はガラス等の気密容器で封止し、更に気密容器の内部に乾燥剤を入れる方法が開示されている。また、特開平8-111286号公報には、薄膜構造体の表面を、酸化珪素又は窒化珪素の保護膜で覆う方法が開示されており、特開平7-192867号公報には、金属電極の上から紫外線硬化樹脂で被覆する方法が開示されており、特開2000-223264号公報には、無機膜及び有機膜を多層に成膜して大気と遮断する方法が開示されており、特開平5-101884号公報には、防湿性高分子フィルムと熱硬化性粘着層とからなる封止フィルムにより大気と遮断する方法が開示されており、特開2001-357973号公報には、上面発光型有機EL素子等において、有機EL素子基板の間に光硬化性接着剤を満たして光を照射して封止する方法が開示されている。

しかしながら、気密容器で封止する方法は、気密容器を設けたことにより厚み

が厚くなるとともに重量も重くなるという問題があった。また、酸化珪素や窒化珪素の保護膜で覆う方法は、素子のリペア（障害素子をレーザー等によって焼断させてオープンにする）時や製造作業時等において、物がぶつかることによる傷の発生を防ぐために膜厚を厚くする必要があるが、膜厚を厚くすると残留応力が増して基板を反らせたり、クラックが発生して特性を劣化させたりし、また、膜厚を厚くすると成膜時間が長くなるという問題があった。

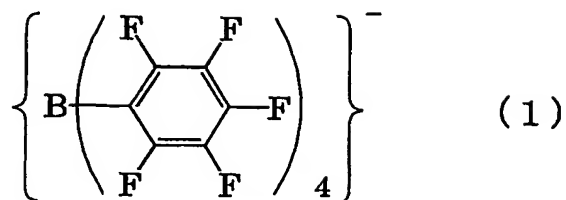
また、光硬化性接着剤や熱硬化性接着剤等により封止を行う場合、接着剤を硬化する際に、有機EL素子が直接熱や光にさらされるために素子の性能が低下しやすく、場合によっては劣化してしまうという問題があった。また、光硬化性接着剤を用いた場合には、光照射時に発生するガスが素子内に充満し素子の劣化を促進してしまったり、金属配線のため光の当たらない部分がある場合や紫外線吸収剤を含有する基板を封止するときには、光硬化性接着剤の硬化が不充分になってしまったりするという問題があった。

## 15 発明の要約

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子を光又は熱により劣化させることなく封止することができる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法、及び、有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することを目的とする。

第1の本発明は、光カチオン重合性化合物と光カチオン重合開始剤とを含有し、光照射により硬化反応が開始し、光を遮断した後にも暗反応で硬化反応が進行する光カチオン重合性接着剤からなる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤である。

上記光カチオン重合性化合物は、芳香族エポキシ樹脂であることが好ましい。また、光カチオン重合開始剤は、下記式（1）で表されるボロン酸を対イオンとする塩であること上記が好ましい。



- 5 更に上記光カチオン重合開始剤は、分子内に少なくとも1つの水酸基を有しかつ光照射により酸を発生する化合物と、分子内に水酸基と反応する官能基を2つ以上有する化合物との反応生成物であること上記が好ましく、分子内に2つ以上の水酸基を有しかつ光照射により酸を発生する化合物と、無水カルボン酸又はジカルボン酸との反応生成物であることがより好ましい。
- 10 上記光カチオン重合性接着剤は、水酸基を有する脂肪族炭化水素及び／又はポリエーテル化合物を含有することが好ましく、充填剤を含有することが好ましく、酸と反応するアルカリ性充填剤及び／又は酸を吸着するイオン交換樹脂を含有することが好ましく、乾燥剤を含有することが好ましい。
- 15 第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤に光を照射した後、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤が硬化するまでの間に、封止板と薄膜構造体間に上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を満たして封止する有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法もまた、本発明の1つである。第1の本発明の
- 20 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤に光を照射した後、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤が硬化するまでの間に、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を薄膜構造体の周囲を封じるよう塗布し、封止板を貼り合わせて封止する有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法もまた、本発明の1つである。
- 25 第2の本発明は、防湿性テープと、上記防湿性テープの少なくとも片面に形成された第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤からなる粘着層とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープである。

上記粘着層は、60℃、90%RHの条件下にてJIS Z 0208に準拠した透湿カップ法により測定した透湿度が $30\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ h} / 100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。粘着層中にシート状乾燥剤を有すること上記が好ましい。

第2の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープを用いて  
5 有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープの粘着層に光を照射した後、粘着層が硬化するまでの間に、薄膜構造体上に貼り付けて封止する有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法もまた、本発明の1つである。

第3の本発明は、第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接  
10 着剤からなる粘着層と、上記粘着層の両面に形成されたセパレーターとを有する有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープである。上記粘着層は、60℃、90%RHの条件下にてJIS Z 0208に準拠した透湿カップ法により測定した透湿度が $30\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ h} / 100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

15 第3の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープを用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープの一方のセパレーターを剥離し、上記セパレーターを剥離した側の粘着層に光を照射した後、上記粘着層が硬化するまでの間に、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープを薄  
20 膜構造体の周囲を封じるように貼り付け、上記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープのもう一方のセパレーターを剥離し、更に上記粘着層上に封止板を被せて封止する有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法もまた、本発明の1つである。

第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、第2の本発  
25 明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、又は、第3の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープを用いて封止されている有機エレクトロルミネッセンス素子もまた、本発明の1つである。

## 図面の簡単な説明

- 図 1 は、薄膜構造体の一例を模式的に示す断面図である。図 2 は、第 1 の本発明の有機 E L 素子封止用接着剤を用いて封止した有機 E L 素子の断面を模式的に示す断面図である。図 3 は、第 1 の本発明の有機 E L 素子封止用接着剤を用いて封止した有機 E L 素子の断面を模式的に示す断面図である。図 4 は、薄膜構造体の外側に無機物からなる保護膜で形成してから第 1 の本発明の有機 E L 素子封止用接着剤を用いて封止した有機 E L 素子の断面を模式的に示す断面図である。図 5 は、第 2 の本発明の有機 E L 素子封止用粘着テープの 1 例を模式的に示す断面図である。図 6 は、粘着層中にシート状乾燥剤を有する第 2 の本発明の有機 E L 素子封止用粘着テープを模式的に示す断面図である。図 7 は、第 2 の本発明の有機 E L 素子封止用粘着テープを用いて封止した有機 E L 素子の断面を模式的に示す断面図である。図 8 は、シート状乾燥剤を有する第 2 の本発明の有機 E L 素子封止用粘着テープを用いて封止した有機 E L 素子の断面を模式的に示す断面図である。図 9 は、薄膜構造体の外側に無機物からなる保護膜で形成してから第 2 の本発明の有機 E L 素子封止用粘着テープを用いて封止した有機 E L 素子の断面を模式的に示す断面図 9 である。図 10 は、第 3 の本発明の有機 E L 素子封止用両面粘着テープの一例を模式的に示す断面図である。図 11 は、第 3 の本発明の有機 E L 素子封止用粘着テープを用いて封止した有機 E L 素子の断面を模式的に示す断面図である。
- 20 図中、1 は基板を表し、2 は陽極を表し、3 は正孔注入層を表し、4 は正孔輸送層を表し、5 は有機薄膜（発光層）を表し、6 は電子注入層を表し、7 は陰極を表し、8 は封止板を表し、9 は接着剤を表し、10 は保護膜を表し、11 は防湿性テープを表し、12 は粘着層を表し、13 は離型フィルムを表し、14 はシート状乾燥剤を表し、15 はセパレーターを表し、16 はセパレーターを表し、20 は薄膜構造体を表し、30 は有機 E L 素子封止用粘着テープを表し、31 はシート状乾燥剤を有する有機 E L 素子封止用粘着テープを表し、40 は有機 E L 素子封止用両面粘着テープを表す。

## 発明の詳細な開示

以下に本発明を詳述する。

第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤（以下、有機EL素子封止用接着剤ともいう）は、光の照射により硬化反応が開始し、光を遮断した後にも暗反応で硬化反応が進行する光カチオン重合性接着剤からなるものである。このような光カチオン重合性接着剤からなることにより、例えば、第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤を有機EL素子を封止するための封止板に塗布し、接着剤に光を照射して接着剤を活性化した後光を遮断し、封止板と薄膜構造体とを貼合させて有機EL素子を封止することができ、熱や光にさらすことなく有機EL素子を封止することができる。

第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤は、光を照射した後、硬化反応が進行して接着ができなくなるまでの使用可能時間が1分以上であることが好ましい。1分未満であると、発光層を封止する前に硬化が進行してしまい、十分な接着強度を得られなくなることがある。

上記光カチオン重合性接着剤は、少なくとも、光カチオン重合性化合物と光カチオン重合開始剤とを含有する。

上記光カチオン重合性化合物としては、分子内に少なくとも1個の光カチオン重合性の官能基を有する化合物であれば特に限定されない。上記光カチオン重合性の官能基としては、例えば、エポキシ基、オキセタン基、水酸基、ビニルエーテル基、エピスルフィド基、エチレンイミン基等の官能基を有する化合物が挙げられる。なかでも、硬化後に高い接着性と耐久性とを発現する、分子内に少なくとも1個のエポキシ基を有するエポキシ基含有化合物が好適である。

上記エポキシ基含有化合物としては特に限定されないが、芳香族エポキシ樹脂が好適である。なかでも、フェノキシ樹脂がより好適である。

上記フェノキシ樹脂としては特に限定されないが、重量平均分子量が5万～10万、エポキシ当量が7000～1万であるものが好適である。このようなフェノキシ樹脂のうち市販されているものとしては、例えば、「エピコート1256」、「エピコート4250」、「エピコート4275」、「エピコート1255

HX30」(以上、ジャパンエポキシレジン社製) ; 「YP-50S」(東都化成社製) 等が挙げられる。

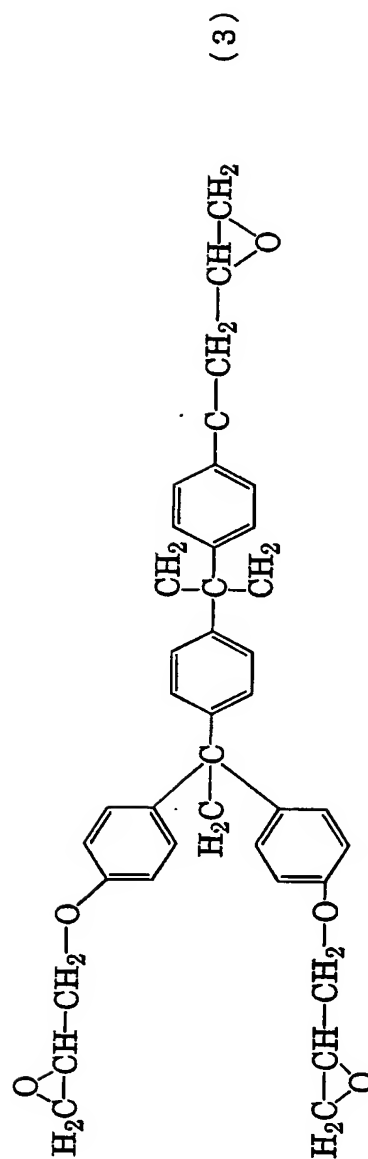
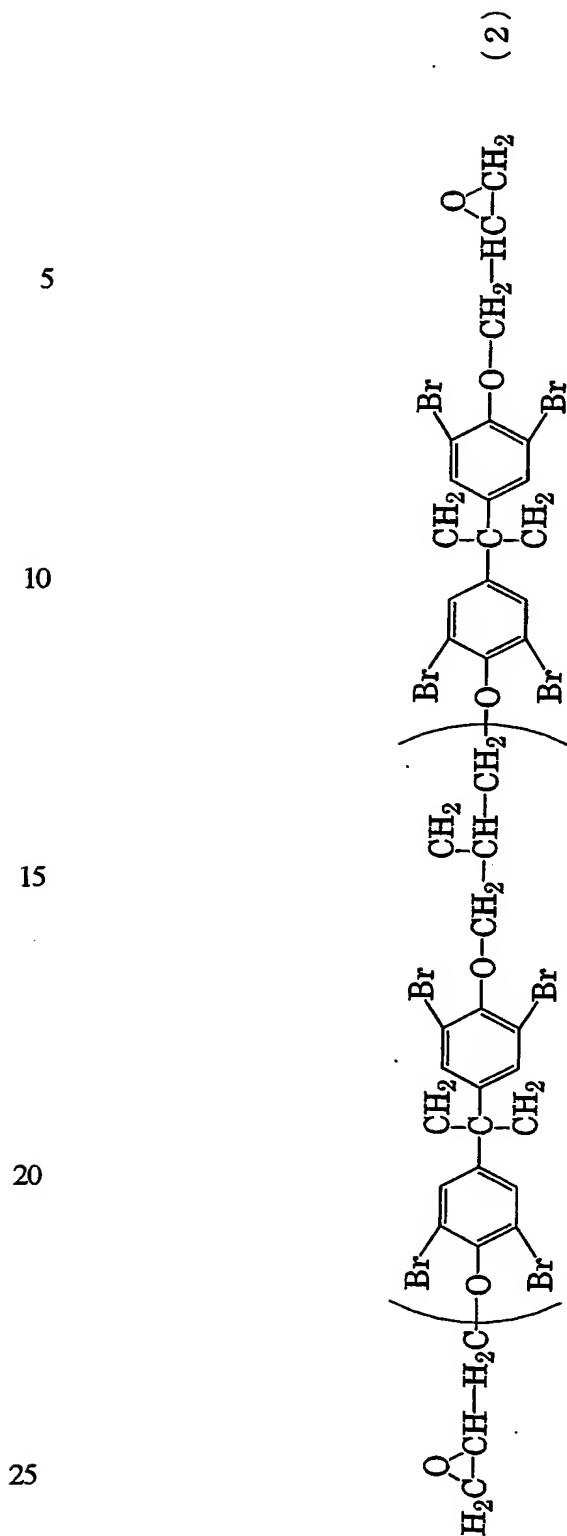
フェノキシ樹脂以外の上記芳香族エポキシ樹脂としては、例えば、下記式(2)  
5     ) で表されるもの等のTBPPA型、下記式(3) で表されるもの等の三官能型、  
      ビフェニル型、ナフタレン型、フェノールノボラック型、クレゾールノボラック  
      型、ジシクロペンタジエン型、テトラフェニロールエタン型等が挙げられる。

10

15

20

25



上記エポキシ基含有化合物の他の例としては、エポキシ基含有モノマーやエポキシ基含有オリゴマーの付加重合体、例えば、エポキシ基含有のポリエステル樹

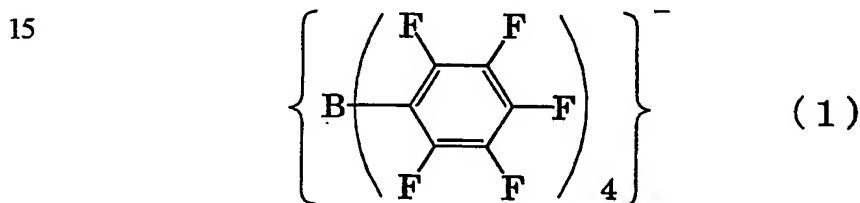
脂、エポキシ基含有ポリウレタン樹脂、エポキシ基含有アクリル樹脂等のエポキシ基含有樹脂等が挙げられる。この際、硬化後の樹脂に適度な柔軟性を付与するために、可撓性のエポキシ樹脂を用いることも可能である。

これらのエポキシ基含有化合物は単独で用いられてもよく、2種類以上が併用されてもよい。

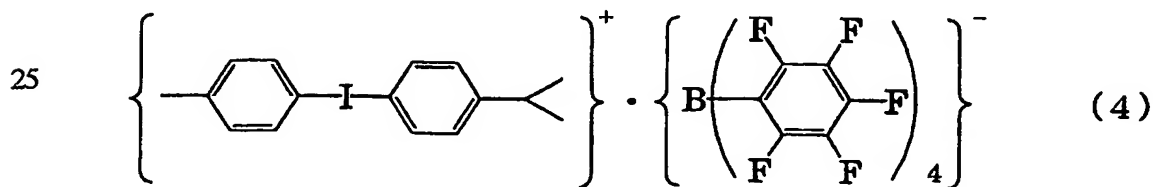
上記光カチオン重合開始剤としては、イオン性光酸発生タイプのものであってもよいし、非イオン性光酸発生タイプであってもよい。

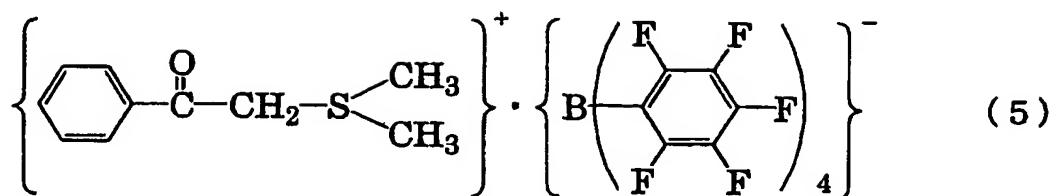
上記イオン性光酸発生タイプの光カチオン重合開始剤としては、例えば、芳香族ジアゾニウム塩、芳香族ハロニウム塩、芳香族スルホニウム塩等のオニウム塩類；鉄-アレン錯体、チタノセン錯体、アリアルシラノール-アルミニウム錯体等の有機金属錯体類等が挙げられる。

なかでも、下記式(1)で表される嵩高いボロン酸を対イオンとする塩からなる光カチオン重合開始剤は、電極と接着剤との界面で電極の酸化が発生しにくく耐久性に優れることから好適である。

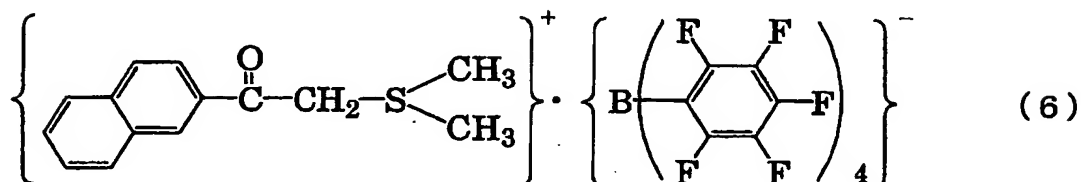


このような光カチオン重合開始剤のうち市販されているものとしては、例えば、下記式(4)で表される「PI-2074」（ローヌプラン社製）、下記式(5)で表される「TAG-371R」（東洋インキ社製）、下記式(6)で表される「TAG-372R」（東洋インキ社製）等が挙げられる。



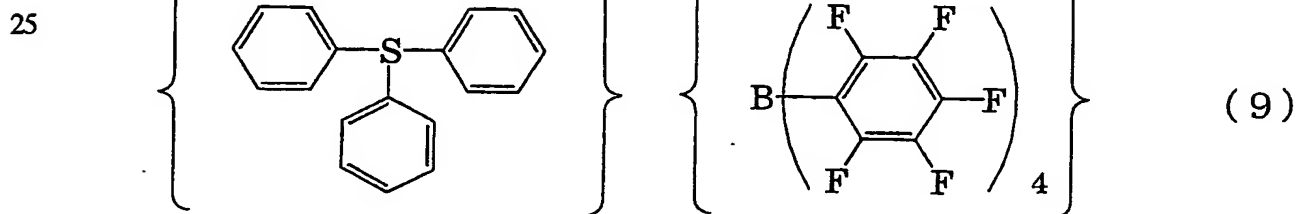
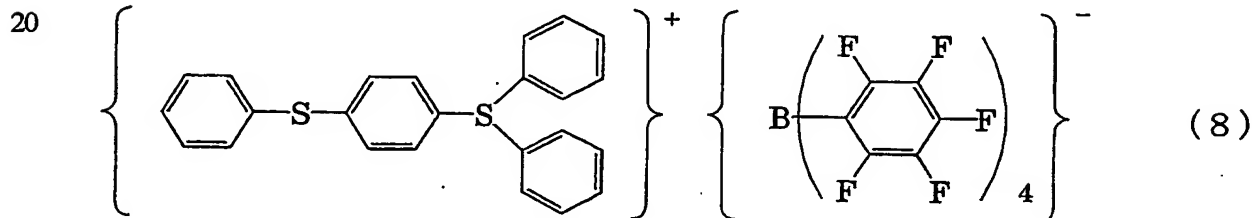
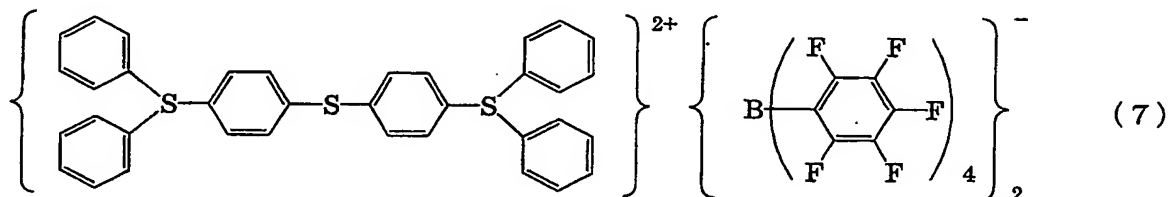


5



10 また、ヨウ素を含む光カチオン重合開始剤は、長波長の光を吸収できることから、重合開始波長を長波長側にできることが期待できるが、一方で、得られる重合体が着色してしまうことがある。この場合、下記式(7)～(9)で表される光カチオン重合開始剤を用いることが、着色することなく重合開始波長を長波長側にできることから好ましい。

15



上記非イオン性光酸発生タイプの光カチオン重合開始剤としては特に限定されず、例えば、ニトロベンジルエステル、スルホン酸誘導体、リン酸エステル、フェノールスルホン酸エステル、ジアゾナフトキノン、N-ヒドロキシイミドスホナート等が挙げられる。

- 5      上記光カチオン重合開始剤としては、高分子量化又は多量化したものをを用いることが好ましい。上記光カチオン重合開始剤が酸を発生してカチオン重合を開始させた後には、その残存物がアウトガスとなって素子を劣化させたりすることがある。本発明者らは、鋭意検討の結果、高分子量化又は多量化した光カチオン重合開始剤を用いれば、アウトガスの発生を抑制できることを見出した。
- 10     上記光カチオン重合開始剤を高分子量化又は多量化する方法としては特に限定されず、例えば、分子内に少なくとも1つの水酸基を有しかつ光照射により酸を発生する化合物と、分子内に水酸基と反応する官能基を2つ以上有する化合物との反応生成物、より好ましくは分子内に2つ以上の水酸基を有しかつ光照射により酸を発生する化合物と、無水カルボン酸又はジカルボン酸との反応生成物を光
- 15     カチオン重合開始剤として用いる方法が好適である。
- 上記分子内に少なくとも1つの水酸基を有しかつ光照射により酸を発生する化合物のうち市販されているものとしては、例えば、スルホニウム塩骨格を有する三新化学社製「SI-80L」、旭電化社製「SP-170」、ヨードニウム塩骨格を有するサートマー社製「CD-1012」等が挙げられる。
- 20     また、上記分子内に水酸基と反応する官能基としては、カルボキシル基、イソシアネート基等が挙げられ、上記分子内に水酸基と反応する官能基を2つ以上有する化合物としては特に限定されないが、無水カルボン酸又はジカルボン酸が好適である。上記無水カルボン酸としては、例えば、無水フタル酸、無水マレイン酸等を挙げることができ、また、上記ジカルボン酸としては、例えば、コハク酸、
- 25     グルタル酸、アジピン酸等の脂肪酸；フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸等の芳香族酸等が挙げられる。

これらの光カチオン重合開始剤は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

上記光カチオン重合性接着剤中における上記光カチオン重合開始剤の配合量としては特に限定されないが、上記光カチオン重合性化合物 100 重量部に対して 0.1～10 重量部が好ましい。0.1 重量部未満であると、光カチオン重合が十分に進行しなかったり、反応が遅くなりすぎたりすることがあり、10 重量部  
5 を超えると、反応が速くなりすぎて作業性が低下したり、反応が不均一になってしまったりすることがある。

上記光カチオン重合性接着剤は、更に、水酸基を有する脂肪族炭化水素及び／又はポリエーテル化合物を含有することが好ましい。上記水酸基を有する脂肪族炭化水素やポリエーテル化合物は、上記光カチオン重合性接着剤の光カチオン重  
10 合反応を阻害することから、適当量を配合することにより光照射後の使用可能時間及び硬化時間を制御する反応調節剤としての役割を果たし、作業性を大幅に向上せしめることができる。

上記水酸基を有する脂肪族炭化水素としては、例えば、グリセリン、ペンタエリスリトール等の多官能水酸基含有化合物が挙げられ、上記ポリエーテル化合物  
15 としては、例えば、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリオキシテトラメチレングリコール等のポリアルキレンオキサイド等が挙げられる。なかでもポリアルキレンオキサイドが好適に用いられ、ポリオキシテトラメチレングリコールが特に好適に用いられる。

上記ポリアルキレンオキサイドの末端は、特に限定されず水酸基でもよいし、  
20 他の化合物によりエーテル化、エステル化されていてもよいし、エポキシ基等の官能基となっていてよく、水酸基、エポキシ基等は上記カチオン重合性化合物と反応するので好適に用いられる。

上記ポリエーテル化合物としては、ポリアルキレンオキサイド付加ビスフェノール誘導体も好適に用いられ、特に末端が水酸基又はエポキシ基を有する化合物  
25 が特に好適に用いられる。これらのうち市販品としては、例えば、リカレジン B PO-20E、リカレジン BEO-60E、リカレジン EO-20、リカレジン PO-20（いずれも新日本理化社製）が挙げられる。

上記光カチオン重合性接着剤中における上記水酸基を有する脂肪族炭化水素及

び／又はポリエーテル化合物の配合量としては特に限定されず、必要とされる使用可能時間及び硬化時間に応じて適宜決定されて添加されるが、一般的には、上記光カチオン重合性化合物 100 重量部に対して 1～30 重量部が好ましく、5～20 重量部がより好ましい。

- 5      上記光カチオン重合性接着剤は、更に、酸と反応するアルカリ性充填剤及び／又は酸を吸着するイオン交換樹脂を含有することが好ましい。上記光カチオン重合性接着剤が光カチオン重合する際には酸が発生して電極を腐食することがあるが、酸と反応するアルカリ性充填剤及び／又は酸を吸着するイオン交換樹脂を含有することにより、上記素子電極の耐久性を向上させることができる。上記酸と
- 10   反応するアルカリ性充填剤としては、酸と中和する物質であれば特に限定されず、例えば、炭酸カルシウム、炭酸水素カルシウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属やアルカリ土類金属の炭酸塩や炭酸水素塩等が挙げられる。上記酸を吸着するイオン交換樹脂としては、陽イオン交換型、陰イオン交換型、両イオン交換型のいずれも使用することができるが、特に塩化物イオンを吸
- 15   着することのできる、陽イオン交換型及び両イオン交換型のものを用いることが好ましい。

- 上記光カチオン重合性接着剤は、更に、充填剤を含有することが好ましい。充填剤を含有することにより、透湿性、接着強度、硬化収縮及び熱膨張率等を改善することができる。上記充填剤としては特に限定されず、例えば、コロイダルシリカ、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、酸化チタン、クレー等の粉体；ガラスバルーン、アルミナバルーン、セラミックバルーン等の無機中空体；ナイロンビーズ、アクリルビーズ、シリコンビーズ、フッ素樹脂ビーズ等の有機球状体；塩化ビニリデンバルーン、アクリルバルーン等の有機中空体；ガラス、ポリエステル、レーヨン、ナイロン、セルロース等の単繊維等が挙げられる。
- 20   25

- 25    ただし、第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤を用いて薄膜構造体の表面を覆うようにして封止する場合には、接着剤の透明性が高いことが必要であることから、上記充填剤は透明であることが好ましく、またその配合量も必要最小限に抑えることが好ましい。第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤は光照射後

も暗反応で反応が進行し、しかも少なくとも数時間かけて反応がゆっくりと進行するように設計できることから、あらかじめ光を照射して部分的に硬化させてから有機EL素子を封止するようにすれば充填剤を含有させずとも確実に封止を行うこともできる。

- 5 上記光カチオン重合性接着剤は、更に、乾燥剤を含有することが好ましい。上記乾燥剤としては特に限定されず、例えば、シリカゲル、モレキュラーシーブ、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化ストロンチウム等のアルカリ土類金属の酸化物等が挙げられる。

- 10 上記光カチオン重合性接着剤を後述する粘着テープの粘着層として用いる場合には、上記光カチオン重合性接着剤は、更に、粘着性樹脂を含有することが好ましい。上記粘着性樹脂としては、粘着層に常温での粘着性とシート凝集力とを付与することができるものであれば特に限定されず、例えば、エポキシ樹脂、アクリル系ポリマー、ポリエステル類、ポリウレタン類、シリコーン類、ポリエーテル類、ポリカーボネート類、ポリビニルエーテル類、ポリ塩化ビニル類、ポリ酢酸ビニル類、ポリイソブチレン類等が挙げられる。また、上記粘着性樹脂は、こ  
15 れらの樹脂の主成分となる単量体を含む共重合体であってもよい。なかでも、優れた初期粘着力を発揮し、粘着物性の制御が容易であることからアクリル系樹脂又はポリエステル系樹脂が好適である。

- 20 上記光カチオン重合性接着剤は、更に必要に応じて、密着性向上剤、補強剤、軟化剤、可塑剤、粘度調整剤等の各種添加物を含有してもよい。

- 第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤の製造方法としては特に限定されず、例えば、ホモディスペー、ホモミキサー、万能ミキサー、プラネタリウムミキサー、ニーダー、三本ロール等の混合機を用いて、常温又は加温下で、光カチオン重合性化合物、光カチオン重合開始剤、その他の配合物の各所定量を混合する方  
25 法が挙げられる。なお、製造は光を遮断した状態で行うことが好ましい。

第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤は、光照射により硬化反応が開始し、光を遮断した後にも暗反応で硬化反応が進行することから、いったん光を照射して活性化させ、完全に硬化するまでに用いれば、光や熱にさらすことなく有機E

L素子を封止することができる。更に、金属配線のため光の当たらない部分がある場合や紫外線吸収剤を含有する基板を封止する場合であっても、確実に封止することができる。第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤は、有機EL素子の封止の他にも、液晶パネルの偏光板の封止等にも好適に用いることができる。

- 5 上記光の波長としては、上記光カチオン重合開始剤が、光カチオン重合性化合物の重合又は硬化を開始させることができる波長であれば特に限定されず、上記光カチオン重合開始剤の感光波長に応じて適宜選択される。また、上記光の照射量としては特に限定されず、上記光カチオン重合開始剤の種類や量等により適宜決定される。このような波長及び照射量の光を照射する照射光源としては、特に限定されず、例えば、蛍光ランプ、高圧水銀灯、キセノン灯等が挙げられる。
- 10 なお、光を照射して第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤を硬化させた後、必要に応じて加熱することにより、更に硬化を促進してもよい。

- 第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤を用いて有機EL素子を封止する方法としては特に限定されないが、例えば、(1) 第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤に光を照射した後、有機EL素子封止用接着剤が硬化するまでの間に、封止板と薄膜構造体間に有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を満たして封止する方法；(2) 第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤に光を照射した後、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤が硬化するまでの間に、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を薄膜構造体の周囲を封じるよう塗布し、封止板を貼り合わせて封止する方法等が挙げられる。これらの有機EL素子を封止する方法もまた、本発明の1つである。
- 15
- 20

- 上記封止板としては外部からの水分の侵入を防ぐ役割果たし得るものであれば特に限定されず、例えば、ガラス板、無機物からなる保護膜等が好適である。上記無機物からなる保護膜としては特に限定されず、例えば、 $\text{Si}_x\text{N}_y\text{O}_z$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、DLC（ダイヤモンドライクカーボン）等が挙げられる。
- 25

本発明の有機EL素子の封止方法は、常温及び常圧にて行うことができるが、水分の制御が行われた空間内で行うことが好ましい。薄膜構造体を封止する際に水分が侵入することを確実に防止するためである。

薄膜構造体を第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤により被覆する際、薄膜構造体の全体を接着剤で被覆することが好ましいが、必ずしも薄膜構造体の全体を接着剤で被覆する必要はなく、少なくとも、薄膜構造体を構成する材料のうち、外気と接触することで、水分や酸素に侵されたり、酸化されたりして有機EL素子の発光特性が劣化する部分を接着剤で被覆すればよい。従って、薄膜構造体の陽極の一部（外縁部付近や側面部分等）は被覆しなくてもよい。

図2及び図3に、第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤を用いて封止した有機EL素子の断面を模式的に示す断面図を示した。図2及び図3に示した有機EL素子では、薄膜構造体20の陽極2及び陰極7の引き出し端子部は、有機EL素子封止用両面接着剤では被覆されずに、基板1の外縁部付近まで導出されている。

また、封止を行う際には、薄膜構造体の外側に無機物からなる保護膜で形成してから、第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤で封止することが好ましい。

上記無機物からなる保護膜としては特に限定されず、例えば、 $\text{Si}_x\text{N}_y\text{O}_z$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、DLC（ダイヤモンドライクカーボン）等が挙げられる。上記無機物からなる保護膜を形成する方法としては特に限定されず、例えば、プラズマCVD法、スパッタリング法、真空蒸着法等により形成することができる。また、ポリイミド、ポリパラキシリレン等のフィルム上に保護膜を形成し、このフィルムを薄膜構造体上に積層してもよい。図4に、薄膜構造体の外側に無機物からなる保護膜で形成してから第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤を用いて封止した有機EL素子の断面を模式的に示す断面図を示した。

第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤は、上述のようにそのまま接着剤として用いて封止を行ってもよいが、テープ状に加工して用いることにより、より効率よく封止を行うことができる。第2の本発明は、防湿性テープと、防湿性テープの少なくとも片面に形成された第1の本発明の有機エレクトロルミネセンス素子封止用接着剤からなる粘着層とを有する有機エレクトロルミネセンス素子封止用粘着テープ（以下、有機EL素子封止用粘着テープともいう）である。

図5に、第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープの1例を模式的に示す

断面図を示した。図5に示した第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープ30は、防湿性テープ11と粘着層12とから構成されている。なお、図5においては、薄膜構造体の外表面上に被覆する前の有機EL素子封止用粘着テープを示しており、粘着層12の一方の面には防湿性フィルム11が形成され、反対側の面には離型フィルム13が形成されている。

上記防湿性テープは、外部からの水分の侵入を防ぐ役割を有し、50℃、相対湿度90%において測定した透湿度が $0.5 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h} / 100 \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。上記防湿性テープは、1種類の透湿度の小さいテープからなる単層体であってもよく、2種類以上の透湿度の小さいテープからなる積層体であってもよい。上記防湿性テープが、積層体である場合には、透湿度の小さいテープからなる層の他、吸湿性のあるテープ又は吸水剤を塗布したテープからなる層を有することが好ましい。また、耐湿性を向上させるため、上記透湿度の小さいテープとしては、アルミニウム、酸化アルミニウム、酸化珪素、窒化珪素等からなる薄膜が蒸着等により形成されたものであってもよい。更に、防湿性フィルムとしては、例えば、アルミニウム箔の上にポリプロピレンやポリエチレンテレフタレート等の樹脂がラミネートされたものであってもよい。

上記透湿度の小さいテープとしては、例えば、三フッ化ポリエチレン、ポリ三フッ化塩化エチレン（PCTFE）、ポリビニリデンフルオライド（PVDF）、PVDFとPCTFEとの共重合体、PVDFとポリフッ化塩化エチレンとの共重合体等のポリフッ化エチレン系ポリマー；ポリイミド、ポリカーボネート、ジシクロペンタジエン等のシクロオレフィン系樹脂、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリエチレン、ポリスチレン等からなるものが挙げられる。

上記吸湿性のあるフィルムとしては、例えば、ナイロン6、ナイロン66等のポリアミド系ポリマー、ビニルアルコールとアクリル酸との共重合体、ポリエチレンオキサイド系重合体、アクリル酸と澱粉との共重合体、澱粉とアクリロニトリルとの共重合体等の高吸水性ポリマーからなるフィルム等が挙げられる。

上記吸水剤としては、例えば、シリカゲル、モレキュラーシーブ、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化ストロンチウム等のアルカリ土類金属の酸化物等が挙

げられる。

上記防湿性テープの厚さとしては $10 \sim 1000 \mu\text{m}$ であることが好ましい。  
より好ましくは $20 \sim 300 \mu\text{m}$ である。

上記離型フィルムは、粘着層の表面を保護する目的で形成されるものであり、  
5 封止の際には、剥離されるものである。上記離型フィルムとしては、離型性を有するフィルムであれば特に限定されず、例えば、紙、ポリエチレンテレフタレート（PET）等のポリエステル、アルミニウム箔等からなる基材表面にシリコン系材料からなる剥離剤をコートしたもの等が挙げられる。

第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープでは、上記防湿性テープ上に本  
10 発明1の有機EL素子封止用接着剤からなる粘着層が形成されている。上記粘着層は、封止する薄膜構造体の外側全体を覆うように、上記防湿性テープの全面に形成されていてもよいし、封止する薄膜構造体を囲うような形に部分的に形成されていてもよい。部分的に粘着層を形成する場合には、封止する薄膜構造体の全体を囲うように形成することが好ましいが、少なくとも、薄膜構造体を構成する  
15 材料のうち、外気と接触することで、水分や酸素に侵されたり、酸化されたりして有機EL素子の発光特性が劣化する部分を囲うよう形成されていればよい。

上記粘着層は、 $60^\circ\text{C}$ 、 $90\%\text{RH}$ の条件下にてJIS Z 0208に準拠した透湿カップ法により測定した透湿度が $30 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h} / 100 \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。 $30 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h} / 100 \mu\text{m}$ を超えると、充分  
20 に酸素や水の浸入を防止できず、有機EL素子を構成する基板上に設けられた電子注入電極と有機薄膜と正孔注入電極とからなる薄膜構造体が劣化してしまうことがある。

第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープは、上記粘着層中にシート状乾燥剤を有することが好ましい。上記シート状乾燥剤は、粘着層の水分を吸収して  
25 薄膜構造体へ移行するのを防止するものである。上記シート状乾燥剤としては、例えば、シリカゲル、モレキュラーシーブ、酸化カルシウム、酸化バリウム、酸化ストロンチウム等の従来公知の乾燥剤が水分が透過できる孔が形成された多孔性フッ素系樹脂フィルムやオレフィン樹脂等で被覆されたもの；乾燥剤を含有す

る多孔質フィルム；非多孔質の透湿フィルムに乾燥剤を含有させたもの等が挙げられる。このように乾燥剤がフッ素系樹脂フィルムやオレフィン樹脂等で被覆されている場合には、乾燥剤が粘着剤や薄膜構造体と直接接触することがなく、有機EL素子を劣化させることがなく、乾燥剤の吸水効果を持続させることができる。

上記シート状乾燥剤は、封止する薄膜構造体を被うことができる程度の大きさで、しかも、薄膜構造体にできるだけ近接する位置に配置することが好ましく、粘着層の離型フィルム側に配置することが好ましい。

図6に、粘着層中にシート状乾燥剤を有する第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを模式的に示す断面図を示した。図6に示した第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープ31は、防湿性テープ11と粘着層12とから構成され、粘着層12にシート状乾燥剤14が配置されている。なお、図6は、薄膜構造体の外表面上に被覆する前の状態を示しており、粘着層12の一方の面には防湿性テープ11が形成され、反対側の面には離型フィルム13が積層されている。

第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを製造する方法としては特に限定されず、例えば、第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を、上記防湿性テープの表面にホットメルト塗工やキャスト塗工等の公知の塗工方法により塗工する方法等が挙げられる。

第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープによれば、粘着層に本発明1の有機EL素子封止用接着剤を用いるため、テープの粘着層にのみ光を照射することで、薄膜構造体を封止することができる。従って、薄膜構造体に直接光が照射されることがなく、薄膜構造体と粘着層が硬化する際に発生するガスとが触れることを防止することができるため、素子を痛めることなく、簡易に薄膜構造体を封止することができる。また、上記粘着層は、透湿度が低いことから、第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを用いて封止した有機EL素子が酸素や水分の浸入により劣化することがなく、長寿命とすることができる。第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープは、有機EL素子の封止の他にも、液晶パネルの偏光板の封止等にも好適に用いることができる。

第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを用いて有機EL素子を封止する方法としては特に限定されないが、例えば、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープの粘着層に光を照射した後、粘着層が硬化するまでの間に、薄膜構造体上に貼り付けて封止する方法等が好適である。このような有機EL素子の封止方法もまた、本発明の1つである。

本発明の有機EL素子の封止方法は、常温及び常圧にて行うことができるが、水分の制御が行われた空間内で行うことが好ましい。薄膜構造体を封止する際に水分が侵入することを確実に防止するためである。

また、薄膜構造体を第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープにより被覆する際、薄膜構造体の全体をテープで被覆することが好ましいが、必ずしも薄膜構造体の全体をテープで被覆する必要はなく、少なくとも、薄膜構造体を構成する材料のうち、外気と接触することで、水分や酸素に侵されたり、酸化されたりして有機EL素子の発光特性が劣化する部分をテープで被覆すればよい。従って、薄膜構造体の陽極の一部（外縁部付近や側面部分等）は被覆しなくてもよい。

図7に、第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを用いて封止した有機EL素子の断面を模式的に示す断面図を示した。図7に示した有機EL素子では、薄膜構造体20の陽極2及び陰極7の引き出し端子部は、有機EL素子封止用粘着テープでは被覆されずに、基板1の外縁部付近まで導出されている。

また、図8に上記シート状乾燥剤を有する第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを用いて封止した有機EL素子の断面を模式的に示す断面図を示した。

また、封止を行う際には、薄膜構造体の外側に無機物からなる保護膜で形成してから、第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープで封止することが好ましい。上記無機物からなる保護膜としては特に限定されず、例えば、 $\text{Si}_x\text{N}_y\text{O}_z$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、DLC（ダイヤモンドライクカーボン）等が挙げられる。上記無機物からなる保護膜を形成する方法としては特に限定されず、例えば、プラズマCVD法、スパッタリング法、真空蒸着法等により形成することができる。また、ポリイミド、ポリパラキシリレン等のフィルム上に保護膜を形成し、このフィルムを薄膜構造体上に積層してもよい。図9に、薄膜構造体の外側に無機物からな

る保護膜で形成してから第2の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを用いて封止した有機EL素子の断面を模式的に示す断面図を示した。

第3の本発明は、第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤からなる粘着層と、粘着層の両面に形成されたセパレーターとを有する有機  
5 エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープ（以下、有機EL素子封止用両面粘着テープともいう）である。

図10に、第3の本発明の有機EL素子封止用両面粘着テープの一例を模式的に示す断面図を示した。図10に示した有機EL素子封止用両面粘着テープ40  
では、粘着層12の両面にセパレーター15、16が形成されている。

10 上記セパレーターは、粘着層の保護フィルム又は支持体として機能するものである。上記セパレーターとしては離型性を有するフィルムからなるものであれば特に限定されず、例えば、紙、ポリエチレンテレフタレート（PET）等のポリエステル、アルミニウム箔等からなる基材表面にシリコン系材料からなる剥離剤をコートしたもの等が挙げられる。

15 なお、上記粘着層の両面に形成されるセパレーターは、粘着層に対する剥がれ易さに差をつけておくことが好ましい。粘着層に光を照射する場合、先に一方のセパレーターを剥離する必要がある、2つのセパレーターの剥がれ易さに差をつけていないと、一方のセパレーターのみを剥がすことができなくなる恐れがある。

上記粘着層は第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤  
20 からなる。上記粘着層は、封止する薄膜構造体の外側全体を覆うように、上記セパレーターの全面に形成されていてもよいし、封止する薄膜構造体を囲うような形に部分的に形成されていてもよい。部分的に粘着層を形成する場合には、封止する薄膜構造体の全体を囲うように形成することが好ましいが、少なくとも、薄膜構造体を構成する材料のうち、外気と接触することで、水分や酸素に侵されたり、酸化されたりして有機EL素子の発光特性が劣化する部分を囲うよう形成されてい  
25 ればよい。

上記粘着層の厚さとしては、第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤の構成、及び、用途に応じた使用可能時間の設定等を考慮して適

宜調整されるが、 $1 \sim 1000 \mu\text{m}$ であることが好ましい。

上記粘着層は、 $60^\circ\text{C}$ 、 $90\%\text{RH}$ の条件下にてJIS Z 0208に準拠した透湿カップ法による透湿度が $30 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h} / 100 \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。 $30 \text{ g/m}^2 \cdot 24 \text{ h} / 100 \mu\text{m}$ を超えると、有機EL素子を

5 構成する基板上に設けられた電子注入電極と有機薄膜と正孔注入電極とからなる薄膜構造体が、酸素や水の浸入により劣化してしまうことがある。

第3の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープを製造する方法としては特に限定されず、例えば、第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を一方のセパレーター上にホットメルト塗工やキャスト塗工等の公知の塗工方法により塗工した後、他方のセパレーターを積層する

10 方法等が挙げられる。

第3の本発明の有機EL素子封止用両面粘着テープは、粘着層に第1の本発明の有機EL素子封止用接着剤を用いるため、粘着層にのみ光を照射することで、薄膜構造体を封止することができる。従って、薄膜構造体に直接光が照射される

15 ことがなく、薄膜構造体と粘着層が硬化する際に発生するガスとが触れることを防止することができるため、素子を痛めることなく、簡易に薄膜構造体を封止することができる。また、上記粘着層は、透湿度が低ことから、本発明3の有機EL素子封止用両面粘着テープを用いて封止した有機EL素子は、酸素や水分の浸入により劣化することがなく、長寿命とすることができる。第3の本発明の有機

20 EL素子封止用両面粘着テープは、有機EL素子の封止の他にも、液晶パネルの偏光板の封止等にも好適に用いることができる。

第3の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを用いて有機EL素子を封止する方法としては特に限定されないが、例えば、第3の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープの一方のセパレーターを剥離し、セパレーターを剥離した側の粘着層に光を照射した後、粘着層が硬化するまでの間に、

25 有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープを薄膜構造体の周囲を封じるように貼り付け、両面粘着テープのもう一方のセパレーターを剥離し、更に粘着層上に封止板を被せて封止する方法が好適である。このような有機エレクトロル

トロルミネッセンス素子の封止方法もまた、本発明の1つである。

上記封止板としては外部からの水分の侵入を防ぐ役割果たし得るものであれば特に限定されず、例えば、ガラス板、無機物からなる保護膜等が好適である。上記無機物からなる保護膜としては特に限定されず、例えば、 $\text{Si}_x\text{N}_y\text{O}_z$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、DLC（ダイヤモンドライクカーボン）等が挙げられる。

本発明の有機EL素子の封止方法は、常温及び常圧にて行うことができるが、水分の制御が行われた空間内で行うことが好ましい。薄膜構造体を封止する際に水分が侵入することを確実に防止するためである。

また、薄膜構造体を第3の本発明の有機EL素子封止用粘着テープにより被覆する際、薄膜構造体の全体をテープで被覆することが好ましいが、必ずしも薄膜構造体の全体をテープで被覆する必要はなく、少なくとも、薄膜構造体を構成する材料のうち、外気と接触することで、水分や酸素に侵されたり、酸化されたりして有機EL素子の発光特性が劣化する部分をテープで被覆すればよい。従って、薄膜構造体の陽極の一部（外縁部付近や側面部分等）は被覆しなくてもよい。

図11に、第3の本発明の有機EL素子封止用粘着テープを用いて封止した有機EL素子の断面を模式的に示す断面図を示した。図11に示した有機EL素子では、薄膜構造体20の陽極2及び陰極7の引き出し端子部は、有機EL素子封止用両面粘着テープでは被覆されずに、基板1の外縁部付近まで導出されている。また、封止を行う際には、薄膜構造体の外側に無機物からなる保護膜で形成してから、第3の本発明の有機EL素子封止用粘着テープで封止することが好ましい。上記無機物からなる保護膜としては特に限定されず、例えば、 $\text{Si}_x\text{N}_y\text{O}_z$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、DLC（ダイヤモンドライクカーボン）等が挙げられる。上記無機物からなる保護膜を形成する方法としては特に限定されず、例えば、プラズマCVD法、スパッタリング法、真空蒸着法等により形成することができる。また、ポリイミド、ポリパラキシリレン等のフィルム上に保護膜を形成し、このフィルムを薄膜構造体上に積層してもよい。

第1の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、第2の本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、又は、第3の本発明

の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープを用いて封止されている有機エレクトロルミネッセンス素子もまた、本発明の1つである。

なお、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤は、偏光板を液晶パネルに固定する接着剤としても利用できる。

5

発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

10 (実施例1～3、比較例1～2)

(1) 有機EL素子基板1の作製

ガラス基板(25mm×25mm×0.7mm)にITO電極を1000Åの厚さで成膜したものを透明支持基板とした。上記透明支持基板をアセトン、アルカリ水溶液、イオン交換水、イソプロピルアルコールにてそれぞれ15分間超音波洗淨した後、煮沸させたイソプロピルアルコールにて10分間洗淨し、更にUV-オゾンクリーナ(NL-UV253、日本レーザー電子社製)にて直前処理を行った。次に、この透明支持基板を真空蒸着装置の基板フォルダに固定し、素焼きの坩堝にN,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニルベンジジン( $\alpha$ -NPD)を200mg、他の異なる素焼き坩堝にトリス(8-ヒドロキシキノリル)アルミニウム(Alq3)を200mg入れ、真空チャンバー内を、 $1 \times 10^{-4}$ Paまで減圧した。その後、 $\alpha$ -NPD入りの坩堝を加熱し、 $\alpha$ -NPDを蒸着速度15Å/sで基板に堆積させ、膜厚600Åの正孔輸送層を成膜した。次いでAlq3の坩堝を加熱し、15Å/sの蒸着速度で膜厚600Åの発光層を形成した。その後、透明支持基板を別の真空蒸着装置に移し、この真空蒸着装置内のタングステン製抵抗加熱ボートにフッ化リチウム200mg、別のタングステン製ボートにアルミニウム線1.0gを入れた。その後真空槽を $2 \times 10^{-4}$ Paまで減圧してフッ化リチウムを0.2Å/sの蒸着速度で5Å成膜した後、アルミニウムを20Å/sの速度で1000Å成膜した。窒素により

25

蒸着器内を常圧に戻し透明支持基盤を取り出して透明支持基盤上に作製した有機EL素子基板1を得た。

## (2) 接着剤の調製

- 5 表1に示した組成に従って、各材料をホモディスパー型攪拌混合機（ホモディスパーL型、特殊機化社製）を用い、攪拌速度3000rpmで均一に攪拌混合して光カチオン重合性接着剤を調製し、これを有機EL素子封止用接着剤とした。

## (3) 素子の封止

- 10 得られた有機EL素子封止用接着剤をガラス製背面板にディスペンサーにて塗布し、高圧水銀灯を用いて波長365nmの紫外線を照射量が2400mJ/cm<sup>2</sup>となるように照射した。その後、窒素ガスを流通させたグローブボックス中で、有機EL素子基板と有機EL素子封止用接着剤を塗布したガラス製背面板を貼合後、10分間放置し接着剤を硬化して有機EL素子を封止した。
- 15 なお、実施例3においては、貼合後60℃で5分間加熱して接着剤の硬化を行った。

## (4) 評価

下記の方法により硬化性、硬化時間及びセルの評価を行った。

- 20 結果を表1に示した。

### (硬化性及び硬化時間)

封止した有機EL素子について、照射終了後、5分毎に、素子基板と背面板が手でずれるかどうかを試験し、硬化性を下記の基準で評価し、ズレが無くなった時間を硬化時間とした。

- 25 ○：全くずれない。

×：接着剤が柔らかくずれた。

### (セル評価)

封止された有機EL素子を温度60℃、湿度90%の条件下に100時間暴露

した後、10Vの電圧を印加し素子の発光状態（発光及びダークスポット、ダークラインの有無）を目視で観察し、下記の基準で評価を行った。なお、比較例1のセルは接着剤が硬化していなかったのでセル評価は行わなかった。

○：ダークスポット無く均一に発光

△：発光するがダークスポット、ダークライン有り

×：全く発光せず

表 1

		実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2
接着剤組成 (重量部)	光カチオン重合性化合物	ビスフェノールA型エポキシ樹脂 (エピコート828)	50	50	50	50
		ビスフェノールF型エポキシ樹脂 (エピコート4004)	30	30	30	30
	光カチオン重合開始剤	アデカオプトマ-SP170	1	1	1	1
	反応調整剤	ポリテトラメチレンジアミン (PTMG1000)	10	—	10	10
		プロピレングリコール付加ビスA型 エポキシ樹脂 (リカルジンBPO20E)	—	10	—	—
充填剤	シリカ(アエロゾル200)	10	10	10	10	10
硬化条件		照射時期			組み立て後照射	
		照射量(mJ/cm <sup>2</sup> )	2400	2400	2400	4800
		後加熱(60℃、5分)	なし	なし	あり	—
評価	硬化性評価	硬化性	○	○	×	○
		硬化時間(分)	20	20	10	—
	セル評価		○	○	○	—

(実施例 4～9、比較例 3)

(2) 有機 EL 素子基板 2 の作製

ガラス基板 (25 mm×25 mm×0.7 mm) を、実施例 1 と同様の方法で  
5 洗浄した後、アルミニウム電極を 1000 Å の厚さで成膜し、透明支持基板とし  
た。次に、この透明支持基板を真空蒸着装置の基板ホルダに固定し、第 1 の素  
焼き坩堝に  $\alpha$ -NPD を 200 mg、第 2 の素焼き坩堝に Alq3 を 200 mg、  
またタングステン製抵抗加熱ボートにフッ化リチウム 200 mg をそれぞれ入れ、  
真空チャンバー内を、 $1 \times 10^{-4}$  Pa まで減圧した。その後、フッ化リチウム  
10 を 0.2 Å/s の蒸着速度で 5 Å 成膜し、次いで Alq3 を 15 Å/s の蒸着速  
度で膜厚 600 Å の発光層を形成した。次いで  $\alpha$ -NPD を蒸着速度 15 Å/s  
で基板に堆積させ、膜厚 600 Å の正孔輸送層を成膜した。その後、透明支持基  
板を酸化インジウムスズ (ITO) のターゲットを備えたスパッタリング装置に  
移し、真空槽を  $2 \times 10^{-4}$  Pa まで減圧した後、アルゴンガスを 0.4 Pa と  
15 なるよう導入した。ITO を 20 Å/s の速度で 1000 Å 成膜し、透明電極を  
設けた。更に、透明支持基板を酸化珪素のターゲットを備えたスパッタリング装  
置に移し、真空槽を  $2 \times 10^{-4}$  Pa まで減圧した後、アルゴンガスを 0.4 Pa  
a となるよう導入した。酸化珪素を 20 Å/s の速度で 1000 Å 成膜し、素子  
の保護層を設けた。窒素により蒸着器内を常圧に戻し透明支持基盤を取り出して  
20 透明支持基盤上に作製した上面発光型の有機 EL 素子基板 2 を得た。

(2) 接着剤の調製

表 2 及び表 3 の組成に従って、各材料をホモディスパー型攪拌混合機 (ホモデ  
ィスパー L 型、特殊機化社製) を用い、攪拌速度 3000 rpm で均一に攪拌混  
25 合して、光カチオン重合性接着剤を調製し、これを有機 EL 素子封止用接着剤と  
した。

(3) 素子の封止

得られた有機EL素子封止用接着剤をガラス製背面板に塗工装置にて $50\mu\text{m}$ の厚さに全面塗布し、高圧水銀灯を用いて波長 $365\text{nm}$ の紫外線を照射量が $2400\text{mJ}/\text{cm}^2$ となるように照射した。その後、真空中にて、有機EL素子基板と有機EL素子封止用接着剤を塗布したガラス製背面板を貼合後、10分間

5 放置し接着剤を硬化させて有機EL素子を封止した。

#### (4) 評価

実施例1と同様の方法により硬化性、硬化時間及びセルの評価を行い、更に、下記の方法により電極耐久性評価を行った。結果を表2及び表3に示した。

#### 10 (電極耐久性評価)

アルミニウム電極が形成されたガラス板の上に有機EL素子封止用接着剤を塗布し、光を照射後、ITO電極が形成されたガラス板を上から挟み込み、固定させたまま硬化させた。その後、 $60^\circ\text{C}$ にて、 $10\text{V}$ の電圧をかけたまま放置し、アルミニウム電極表面の変化を目視により確認した。

表 2

			実施例4	実施例5	比較例3
20 接着剤組成 (重量部)	光カチオン重合性 化合物	ビスフェノールA型エポキシ樹脂 (エピコート828)	40	40	40
		ビスフェノールF型エポキシ樹脂 (エピコート807)	40	40	40
	光カチオン 重合開始剤	アデカオプトマー-SP170	1	1	1
	反応調整剤	ポリテトラメチレングリコール (PTMG1000)	10	—	—
		プロピレングリコール付加ビスA型 エポキシ樹脂 (リカレジンBPO20E)	—	10	—
	充填剤	スチレンビーズ(直径 $5\mu\text{m}$ )	10	10	10
25 硬化条件	照射時期		組み立て前照射		組み立て 後照射
	照射量( $\text{mJ}/\text{cm}^2$ )		2400	2400	4800
	後加熱( $60^\circ\text{C}$ 、5分)		なし	なし	—
評価	硬化性評価	硬化性	○	○	○
		硬化時間(分)	20	20	—
	セル評価		○	○	x

表 3

	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9
ビスフェノールA型エポキシ樹脂 (エピコート828)	40	40	40	40
ビスフェノールF型エポキシ樹脂 (エピコート4004)	40	40	40	40
アデカオプトマ-SP170	—	1	1	1
Photoinitiator 2074	0.4	—	—	—
プロレングリコール付加ビスA型 エポキシ樹脂 (リカレンBPO60E)	10	10	10	10
増感剤 DETX	0.2	—	—	—
充填剤 スチレンビーズ	10	10	10	10
炭酸カルシウム	—	2	—	—
両イオン交換樹脂(IXE600)	—	—	2	—
硬化条件	組み立て後照射			
	照射時期	2400	2400	2400
	照射量(mJ/cm <sup>2</sup> )	なし	なし	なし
	後加熱(60°C、5分)	○	○	○
評価	硬化性評価	硬化性	硬化時間(分)	セル評価
		硬化性	硬化時間(分)	電極変色
		硬化性	硬化時間(分)	セル評価
		硬化性	硬化時間(分)	電極変色

(実施例10)

## (1) 有機EL素子の作製

25mm×25mm×0.7mmのガラス基板に、ITO電極を100nmの厚さで成膜したものを透明支持基板とした。これをアセトンで15分間超音波洗浄し、アルカリ水溶液で15分間超音波洗浄した後、イソプロピルアルコールで

1 5 分間超音波洗浄し、更に煮沸させたイソプロピルアルコールにて1 0 分間洗浄し、更にUVオゾンクリーナ（日本レーザー電子社製「NL-UV253」）にて直前処理を行った。次いで、上記透明支持基板を市販の真空蒸着装置（日本真空技術社製）の基板フォルダに固定し、素焼きの坩堝にN, N'-ジ（1-ナフチル）-N, N'-ジフェニルベンジジン（ $\alpha$ -NPD）を200mg入れ、  
5 また、別の異なる素焼きの坩堝にトリス（8-ヒドロキシキノリル）アルミニウム（Alq3）を200mg入れ、真空チャンバー内を $1 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した。更に、 $\alpha$ -NPD入りのボートを加熱し、 $\alpha$ -NPDを蒸着速度15 Å/秒で基板に堆積させ、膜厚600 Åの正孔輸送層を成膜した。このときの基板温度は室温であった。これを真空槽から取り出すことなく、別の坩堝を加熱し、蒸着速度15 Å/秒でAlq3膜を形成した。その後、一旦真空チャンバーから取り出し、タングステン製抵抗加熱ボートにフッ化リチウム200mg入れ、タングステン製フィラメントにアルミニウム線1.0gを巻き付けた。次に、真空槽を $2 \times 10^{-4}$  Paまで減圧して、フッ化リチウムを0.2 Å/秒の蒸着速度で  
10 5 Å成膜した後、アルミニウムを20 Å/秒の蒸着速度で1000 Å成膜して、発光素子を作製した。

## （2）接着剤の調製

ナス型フラスコ（50 mL）にモレキュラーシーブを入れ、絶乾条件下、水酸基を有するスルホニウム塩型光カチオン性開始剤のプロピレンカーボネート溶液（旭電化社製「SP-170」）10重量部及び無水フタル酸5重量部を、トルエン100重量部中で還流させながら5時間攪拌して反応させ、反応生成物を得た。得られた反応生成物を減圧乾燥後カラムクロマトグラフィーにて精製し、高分子量化光カチオン開始剤を得た。

25 次いで、得られた光カチオン開始剤1重量部、ビスフェノールAグリシジルエーテル（ジャパンエポキシレジン社製「EP828」）100重量部及びタルク20重量部を、遊星式攪拌機にて充分攪拌した後、減圧脱泡を行い、光カチオン重合性接着剤を得、これを有機EL素子封止用接着剤とした。

### (3) 素子の封止

乾燥条件下で、ガラス缶に得られた有機EL素子封止用接着剤をシリンジで塗布したものを上記発光素子上の基板に貼りつけた後、周囲についた有機EL素子封止用接着剤に超高圧水銀灯を用いて波長365nmの紫外線を照射量が2400mJ/cm<sup>2</sup>となるように照射して硬化させ、発光素子を封止した。

### (4) 評価

得られた有機EL素子封止用接着剤及び封止した有機EL素子について、以下の方法により評価を行った。結果を表4に示した。

#### (アウトガス量の測定)

有機EL素子封止用接着剤をベーカー式アプリーケーターにて100μmの厚みで塗工した後、塗膜上に高圧水銀灯を用いて波長365nmの紫外線を照射量が2400mJ/cm<sup>2</sup>となるように照射した。次いで、得られた塗膜につき、熱分析装置 (Seiko Instrument社製「TG/DTA 6200」) を使用して、昇温速度10℃/分における150℃での重量減少率を測定し、塗膜のアウトガス量とした。

#### (ダークスポットの発生)

封止された有機EL素子を40℃、60%RHの条件下で200時間放置した後、通電 (10V) したときのダークスポット及びダークライン (即ち非発光部分) の発生を確認した。

### (実施例11)

ナス型フラスコ (50mL) にモレキュラーシーブを入れ、絶乾条件下、スルホニウム塩型光カチオン性開始剤 (サートマー社製「CD-1012」) 10重量部、カルボジイミド化合物 (日清紡社製「カルボジライト油性樹脂改質剤V-05」) 1重量部及びトリレンジイソシアネート1重量部を、トルエン100重量部中で還流条件下にて5時間攪拌して反応させた後、減圧乾燥及びカラムクロマ

トグラフィーによる精製を行い、高分子量化光カチオン重合開始剤を得た。

次いで、得られた光カチオン重合開始剤 1 重量部、ビスフェノール A グリシジルエーテル（ジャパンエポキシレジン社製「EP828」） 100 重量部及びタルク 20 重量部を、遊星式攪拌機にて充分攪拌した後、減圧脱泡を行い、光カチオン重合性接着剤を得、これを有機 EL 素子封止用接着剤とした。

得られた有機 EL 素子封止用接着剤を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子の封止を行い、同様の評価を行った。結果を表 4 に示した。

#### （比較例 4）

高分子量化した光カチオン重合開始剤の代わりに、水酸基を有するスルホニウム塩型光カチオン性開始剤（旭電化社製「SP-170」）を用いた以外は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子封止用接着剤を得、同様に 365 nm の光を照射量 2400 mJ となるように照射して封止を行い、同様の評価を行った。結果を表 4 に示した。

表 4

	重量減少率(%)	ダークスポットの有無
実施例10	0.20	なし
実施例11	0.35	なし
比較例4	0.68	若干あり

#### （実施例 12）

##### （1）薄膜構造体の作製

25 mm×25 mm×0.7 mm の大きさのガラス基板に、ITO 電極を 100 nm の厚さで成膜したものを透明支持基板とした。上記透明支持基板を、アセトンで 15 分間超音波洗浄、アルカリ水溶液で 15 分間超音波洗浄、イオン交換水で 15 分間超音波洗浄、イソプロピルアルコールで 15 分間超音波洗浄、沸騰させたイソプロピルアルコールで 10 分間超音波洗浄の順番で洗浄した後、更に、

UV-オゾンクリーナ（日本レーザー電子社製「NL-UV253」）にて、直前処理を行った。

次に、この洗浄を行った透明支持基板を真空蒸着装置（日本真空技術社製）の基板ホルダに固定し、素焼きの坩堝にN', N-ジ（1-ナフチル）-N, N'-ジフェニルベンジジン（ $\alpha$ -NPD）を200mg入れ、また、異なる素焼きの坩堝にトリス（8-ヒドロキシキノリル）アルミニウム（Alq3）を200mg入れ、真空チャンバー内を $1 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した。

次に、 $\alpha$ -NPD入りのボートを加熱し、 $\alpha$ -NPDを蒸着速度 $15 \text{ \AA/s}$ で透明支持基板に堆積させ、膜厚 $600 \text{ \AA}$ の正孔輸送層を成膜した。このときの透明支持基板の温度は室温であった。

続いて、上記正孔輸送層を形成した透明支持基板を、真空槽から取り出すことなく、もう一つの坩堝を加熱し、Alq3を蒸着速度 $15 \text{ \AA/s}$ で正孔輸送層に堆積させ、膜厚 $600 \text{ \AA}$ の有機薄膜（発光層）（Alq3膜）を形成した。

次に、一旦、正孔輸送層と、発光層とを形成した透明支持基板を真空チャンバーから取り出し、タングステン製抵抗加熱ボートにフッ化リチウムを200mg入れ、タングステン製フィラメントにアルミニウム線を1.0g巻き付けた。

次に、上記正孔輸送層と、発光層とを形成した透明支持基板を、再度真空チャンバー内にセットして、真空槽を $2 \times 10^{-4}$  Paまで減圧した。

そして、タングステン製抵抗加熱ボートを加熱して、フッ化リチウムを蒸着速度 $0.2 \text{ \AA/s}$ で発光層に堆積させ、膜厚 $5 \text{ \AA}$ の電子注入層を成膜し、続いて、タングステン製フィラメントを加熱して、アルミニウムを蒸着速度 $20 \text{ \AA/s}$ で電子注入層に堆積させ、膜厚 $1000 \text{ \AA}$ の陰極を成膜することで、薄膜構造体を作製した。

## 25 (2) 有機EL素子封止用粘着テープの作製

光カチオン重合性化合物として、エポキシ樹脂（ビスフェノールAグリシジルエーテル、油化シェルエポキシ社製「エピコート828」）を用いた。また、光カチオン重合開始剤として、芳香族スルホニウム6フッ化アンチモン塩（旭電

化工業社製「アデカオプトマーSP170」)を用いた。また、粘着性樹脂として、テレフタル酸25モル%、イソフタル酸25モル%、エチレングリコール、ネオペンチルグリコール17.5モル%、ビスフェノールAのエチレングリコール付加物17.5モル%、及び、テトラメチレンエーテルグリコール25モル%が共重合されたポリエステルを用いた。また、充填剤としてタルクを用いた。

光カチオン重合性化合物を80重量部と、光カチオン重合開始剤を1重量部と、粘着性樹脂を20重量部と、充填剤を20重量部と、メチルエチルケトン150重量部とを、ホモディスパー型攪拌混合機(商品名「ホモディスパーL型」、特殊機化社製)を用いて攪拌速度3000rpmで均一に攪拌混合して、樹脂組成物を調製した。

得られた樹脂組成物を、厚さ7 $\mu$ mのアルミニウム箔の両面に厚さ50 $\mu$ mのポリエチレンテレフタレートがラミネートされた防湿性テープ上に、塗工後の厚みが100 $\mu$ mとなるように塗工し、乾燥させて粘着層を形成して有機EL素子封止用粘着テープを得た。

なお、得られた有機EL素子封止用粘着テープの粘着層上に、離型フィルムとして、シリコーン離型処理が施されたPETフィルムの離型処理面をラミネートした。

### (3) 薄膜構造体の封止

得られた有機EL素子封止用粘着テープの離型フィルムを剥離した後、粘着層に、超高圧水銀灯を用いて、波長365nmの紫外線を、照射量が2400mJ/cm<sup>2</sup>となるように照射した。その後、速やかにテープを、窒素ガスを流通させたグローブボックス内に移した薄膜構造体の外表面上に被覆し、手でテープ圧着して、薄膜構造体を封止して有機EL素子を製造した。

### (実施例13)

#### (1) 有機EL素子封止用両面粘着テープの作製

実施例12と同様の方法により調製した樹脂組成物を、離型処理が施された厚

さ50 $\mu$ mのPETフィルム（離型フィルム）上に、バーコータを用いて塗工後の厚みが100 $\mu$ mとなるように塗工し、乾燥させて粘着層を形成した。なお、粘着層は、その内部に薄膜構造体の正孔輸送層、発光層、電子注入層及び陰極を囲うことができる筒状とした。

- 5 次に、粘着層のPETフィルム非形成面に、保護フィルムとして、シリコーン離型処理が施されたPETフィルム（離型フィルム）の離型処理面をラミネートして有機EL素子封止用両面粘着テープを得た。

## （2）薄膜構造体の封止

- 10 得られた有機EL素子封止用両面粘着テープから、保護フィルムとしてのPETフィルムを剥離した後、粘着層に、超高圧水銀灯を用いて、波長365nmの紫外線を、照射量が2400mJ/cm<sup>2</sup>となるように照射した。その後、速やかに上記支持体としてのPETフィルムが形成された状態の粘着層を、窒素ガスを流通させたグローブボックス内に移した実施例12で作製した薄膜構造体の陽
- 15 極上であって、正孔輸送層、発光層、電子注入層及び陰極の外周部分を囲うように被せ、支持体としてのPETフィルムを剥離することで、薄膜構造体の陽極上であって、正孔輸送層、発光層、電子注入層及び陰極の外周部分を囲うように粘着層を形成した。そして、粘着層上に、25mm×25mm×0.7mmの大きさのガラス板を被せた後、手にて圧着し、薄膜構造体を封止して、有機EL素子
- 20 を製造した。

## （比較例5）

- 実施例12で作製した薄膜構造体をテープで封止せずに有機EL素子として使用した。この有機EL素子を、温度60℃、相対湿度90%の条件下に放置した
- 25 ところ、100時間後に全く発光しなくなった。

## （実施例14）

### （1）有機EL素子封止用粘着テープの作製

光カチオン重合性化合物として、エポキシ樹脂（ビスフェノールAグリシジルエーテル、エピコート828、油化シェルエポキシ社製）を用い、光カチオン重合開始剤として、芳香族スルホニウム6フッ化アンチモン塩（アデカオプトマーSP170、旭電化工業社製）を用い、粘着性樹脂としてフェノキシ樹脂（EP1256、ジャパンエポキシレジン社製）、充填材としてタルクを用いた。

エポキシ樹脂30重量部、光カチオン開始剤1重量部、フェノキシ樹脂70重量部、充填材20重量部及びメチルエチルケトン150部を、ホモディスパー型攪拌混合機（商品名「ホモディスパーL型、特殊機化社製」）を用いて攪拌速度3000rpmで均一に攪拌混合して、樹脂組成物を調整した。

10 得られた樹脂組成物を、易接着ポリエステルフィルム（38 $\mu$ m）／黒色印刷面（5 $\mu$ m）／アルミ箔（7 $\mu$ m）／ポリエステルフィルム（38 $\mu$ m）の構造の多層フィルムからなる防湿性テープ上に、バーコータを用いて塗工後の厚さが20 $\mu$ mになるように塗工、乾燥させて粘着層を形成し、有機EL素子封止用粘着テープを得た。

15 なお、得られた有機EL素子封止用粘着テープの粘着層上に、離型フィルムとして、シリコーン離型処理が施されたPETフィルムの離型処理面をラミネートした。

一方、透湿度及びアウトガスを測定するために、離型処理されたPETフィルム上に樹脂組成物を、塗工後の厚さが100 $\mu$ mとなるように塗工、乾燥した後、  
20 離型処理されたPETフィルム粘着層面にラミネートして、測定用テープを作製した。

## （2）薄膜構造体の封止

得られた有機EL素子封止用粘着テープの離型フィルムを剥離した後、粘着層  
25 に、超高圧水銀灯を用いて、波長365nmの紫外線を、照射量が2400mJ/cm<sup>2</sup>となるように照射した。その後、速やかにテープを、窒素ガスを流通させたグローブボックス内に移した実施例12で作製した薄膜構造体の外表面上に被覆し、手でテープ圧着して、薄膜構造体を封止して有機EL素子を製造した。

## (実施例 15)

エポキシ樹脂（エポコート 828）30重量部の代わりに、エポコート 828  
を 25 重量部、フェニルグリシジルエーテル 10 重量部を用い対外は実施例 12  
5 と同様にして樹脂組成物を調製し、これを用いて有機 EL 素子封止用粘着テープ、  
有機 EL 素子を製造した。

## (比較例 6)

フェニルグリシジルエーテルの代わりにビスフェノール骨格及びエチレングリ  
10 コール骨格を有するエポキシ化合物（新日本理化社製 リカレジン BPO-20  
E）を用いたこと以外は実施例 15 と同様にして樹脂組成物を調製し、これを用  
いて有機 EL 素子封止用粘着テープ、有機 EL 素子を製造した。

## (比較例 7)

15 フェノキシ樹脂の代わりに、テレフタル酸 25 モル%、イソフタル酸 25 モル  
%、エチレングリコール、ネオペンチルグリコール 17.5 モル%、ビスフェノ  
ール A のエチレングリコール付加物 17.5 モル%、及びテトラメチレンエー  
テルグリコール 25 モル%が共重合されてなるポリエステルを用いたこと以外は  
実施例 13 と同様にして樹脂組成物を調製し、これを用いて有機 EL 素子封止用  
20 粘着テープ、有機 EL 素子を製造した。

## 評価

## (通電発光テスト)

(1) 実施例 12、13 及び比較例 5 で得られた有機 EL 素子を、温度 60℃、  
25 相対湿度 90% の条件下に 500 時間放置した後、有機 EL 素子に通電（10V  
）させて、ダークスポット及びダークライン（即ち、非発光部分）の有無を目視  
にて観察した。結果を表 5 に示した。

(2) 実施例 14、15 及び比較例 6、7 で得られた有機 EL 素子を、温度 40

℃、相対湿度 60 % の条件下に 500 時間放置した後、有機 EL 素子を通電 (10 V) させて、ダークスポット及びダークライン (即ち、非発光部分) の有無を目視にて観察した。結果を表 5 に示した。

## 5 (透湿度測定)

実施例 14、15 及び比較例 6、7 で得られた測定用テープの、一方のセパレーターを剥離し、粘着層に超高圧水銀灯を用いて波長 365 nm の紫外線を照射量が 2400 mJ/cm<sup>2</sup> となるように照射した。その後、もう一方のセパレーターを剥離し、得られたサンプルについて、JIS Z 0208 に準ずる透湿  
10 カップ法により、透湿度を測定した (40℃、24 時間)。結果を表 5 に示した。

## (アウトガス測定)

透湿度測定において得られたサンプルを、熱分析装置 (Seiko Instrument 社製、TG/DTA 6200) にて、昇温速度 10℃/min  
15 で加熱し、加熱時の重量減少を測定した。結果を表 5 に示した。

表 5

	ダークスポット の有無	透湿度 (g/cm <sup>2</sup> ・24hr)	使用可能時間 (分)	重量減少率 (%)
実施例 12	なし	—	—	—
実施例 13	なし	—	—	—
実施例 14	なし	20	3	0.27
実施例 15	なし	30	8	0.35
比較例 5	発光せず	—	—	—
比較例 6	若干あり	62	10	2.45
比較例 7	若干あり	43	10	0.83

## 産業上の利用可能性

本発明によれば、有機エレクトロルミネッセンス素子を光又は熱により劣化さ

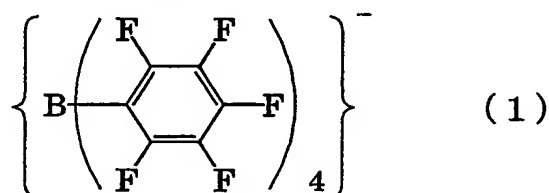
せることなく封止することができる有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープ、有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法、及び、有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できる。

## 請求の範囲

1. 光カチオン重合性化合物と光カチオン重合開始剤とを含有し、光照射により硬化反応が開始し、光を遮断した後にも暗反応で硬化反応が進行する光カチオン重合性接着剤からなることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

2. 光カチオン重合性化合物は、芳香族エポキシ樹脂であることを特徴とする請求の範囲第1項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

3. 光カチオン重合開始剤は、下記式(1)で表されるボロン酸を対イオンとする塩であることを特徴とする請求の範囲第1又は2項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。



4. 光カチオン重合開始剤は、分子内に少なくとも1つの水酸基を有しかつ光照射により酸を発生する化合物と、分子内に水酸基と反応する官能基を2つ以上有する化合物との反応生成物であることを特徴とする請求の範囲第1、2又は3項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

5. 光カチオン重合開始剤は、分子内に2つ以上の水酸基を有しかつ光照射により酸を発生する化合物と、無水カルボン酸又はジカルボン酸との反応生成物であることを特徴とする請求の範囲第1、2又は3項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

6. 光カチオン重合性接着剤は、水酸基を有する脂肪族炭化水素及び／又はポリ

エーテル化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4又は5項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

7. 光カチオン重合性接着剤は、充填剤を含有することを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5又は6項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

8. 光カチオン重合性接着剤は、酸と反応するアルカリ性充填剤及び／又は酸を吸着するイオン交換樹脂を含有することを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6又は7項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

9. 光カチオン重合性接着剤は、乾燥剤を含有することを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7又は8項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤。

10. 請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8又は9項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、  
前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤に光を照射した後、前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤が硬化するまでの間に、封止板と薄膜構造体間に前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を満たして封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法。

11. 請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8又は9項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、  
前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤に光を照射した後、前記有

機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤が硬化するまでの間に、前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤を薄膜構造体の周囲を封じるよう塗布し、封止板を貼り合わせて封止する

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法。

5

12. 防湿性テープと、前記防湿性テープの少なくとも片面に形成された請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8又は9項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤からなる粘着層とを有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ。

10

13. 粘着層は、60℃、90%RHの条件下にてJIS Z 0208に準拠した透湿カップ法により測定した透湿度が $30\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ h}/100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求の範囲第12項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ。

15

14. 粘着層中にシート状乾燥剤を有することを特徴とする請求の範囲第12又は13項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ。

20

15. 請求の範囲第12、13又は14項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープを用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープの粘着層に光を照射した後、粘着層が硬化するまでの間に、薄膜構造体上に貼り付けて封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法。

25

16. 請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8又は9項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤からなる粘着層と、前記粘着層の両面に形成されたセパレーターとを有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセン

ス素子封止用両面粘着テープ。

17. 粘着層は、60℃、90%RHの条件下にてJIS Z 0208に準拠した透湿カップ法により測定した透湿度が $30\text{ g/m}^2 \cdot 24\text{ h} / 100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求の範囲第16項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープ。

18. 請求の範囲第16又は17項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープを用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を封止する方法であって、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープの一方のセパレーターを剥離し、前記セパレーターを剥離した側の粘着層に光を照射した後、前記粘着層が硬化するまでの間に、前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープを薄膜構造体の周囲を封じるように貼り付け、前記有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープのもう一方のセパレーターを剥離し、更に前記粘着層上に封止板を被せて封止することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法。

19. 請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8又は9項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤、請求の範囲第12、13又は14項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用粘着テープ、又は、請求の範囲第16又は17項記載の有機エレクトロルミネッセンス素子封止用両面粘着テープを用いて封止されていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

図 1

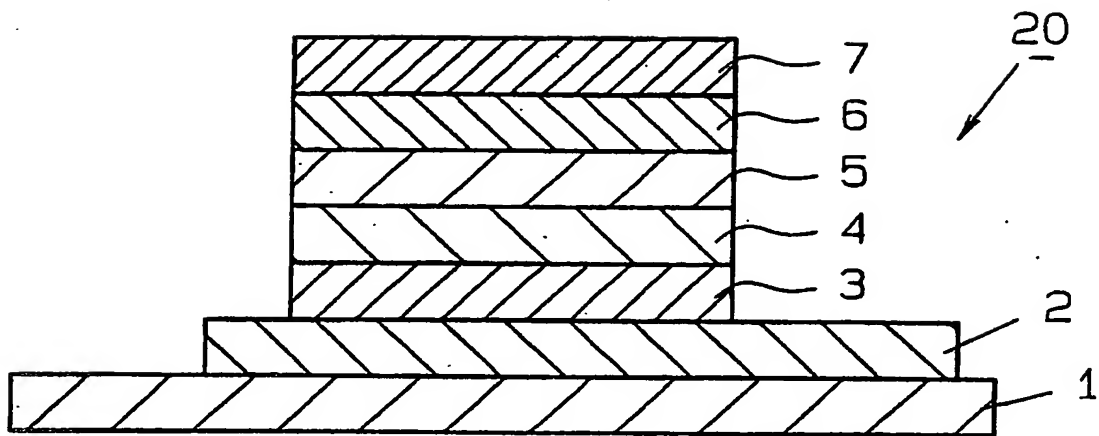


図 2

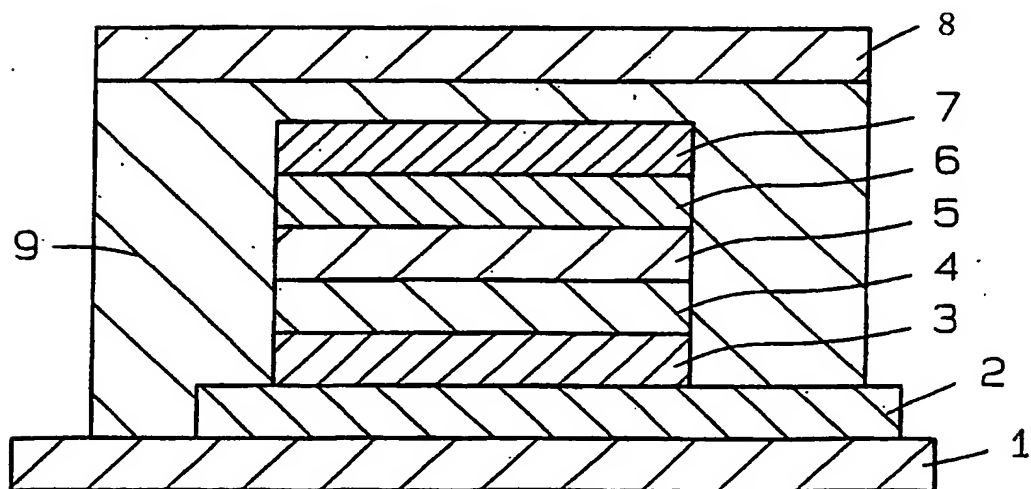


図 3

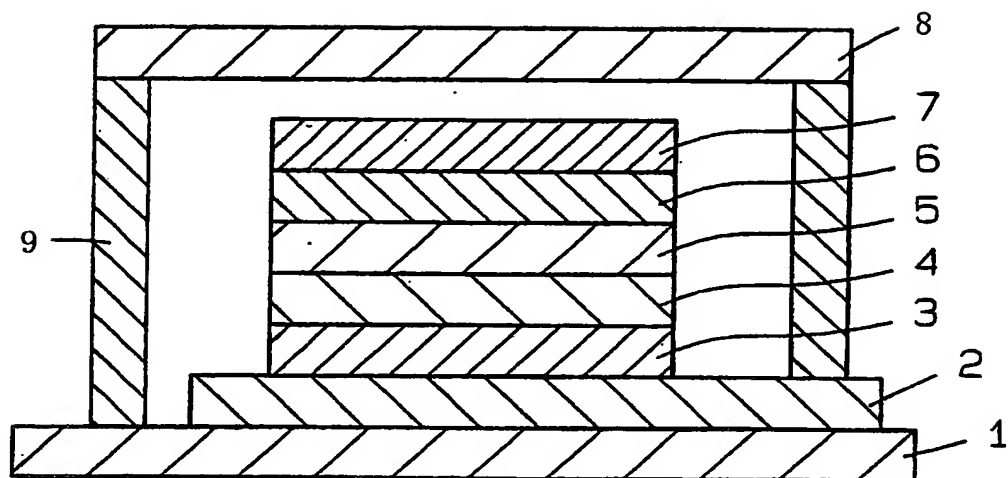


図 4

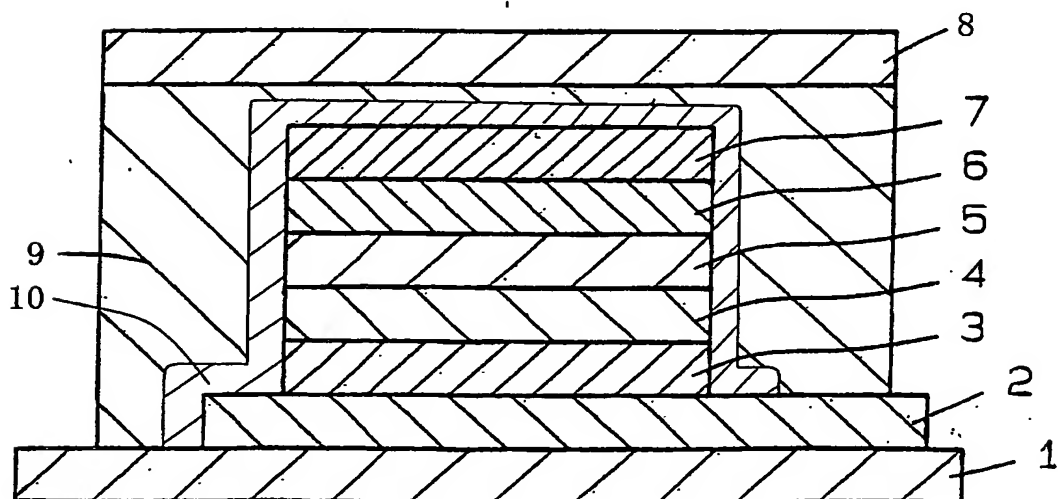


図 5

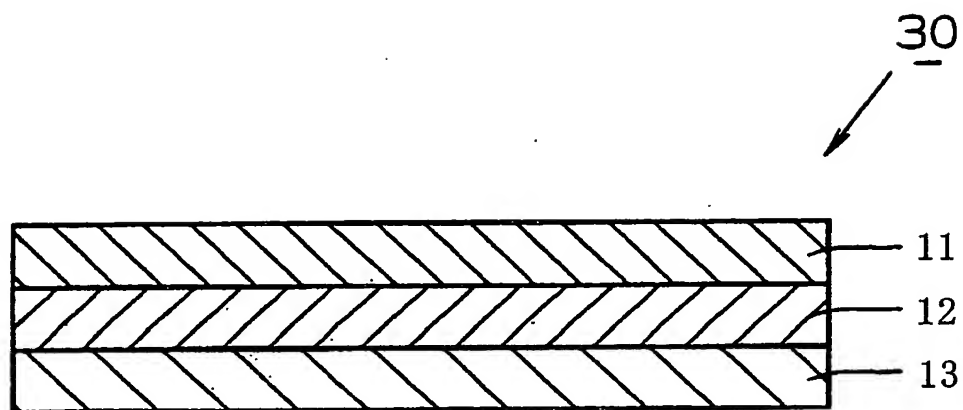


図 6

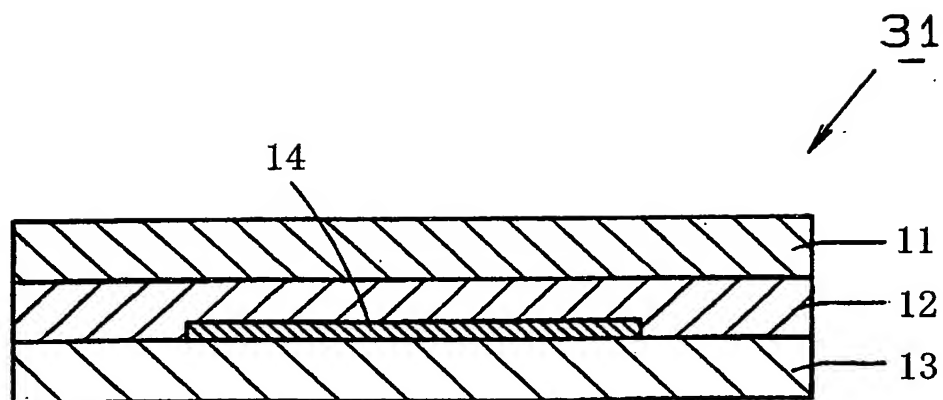


図 7

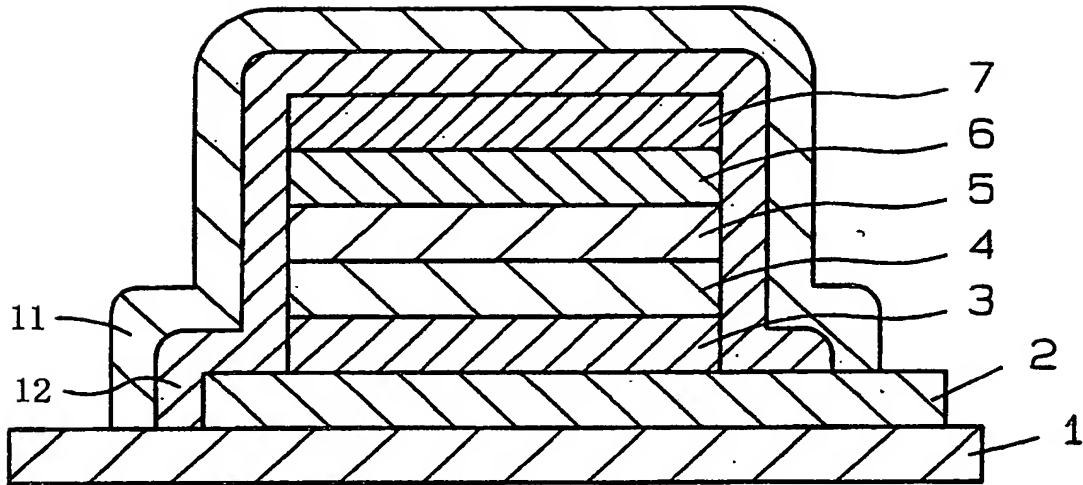


図 8

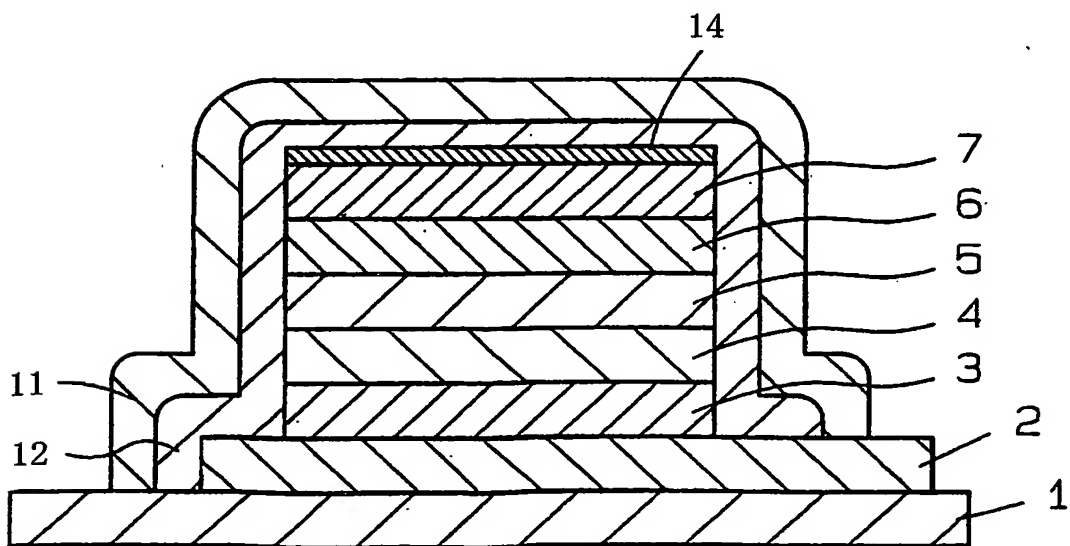


図 9

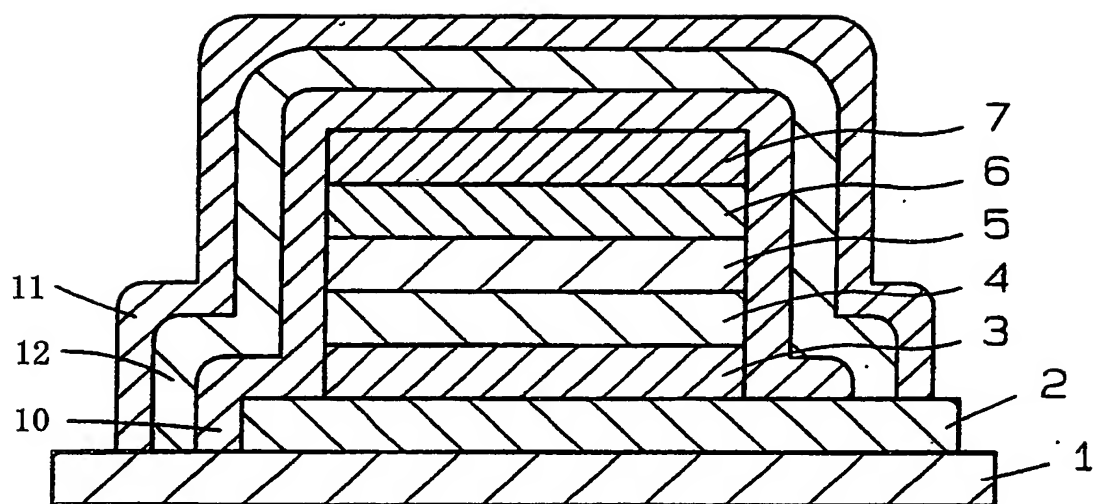


図 10

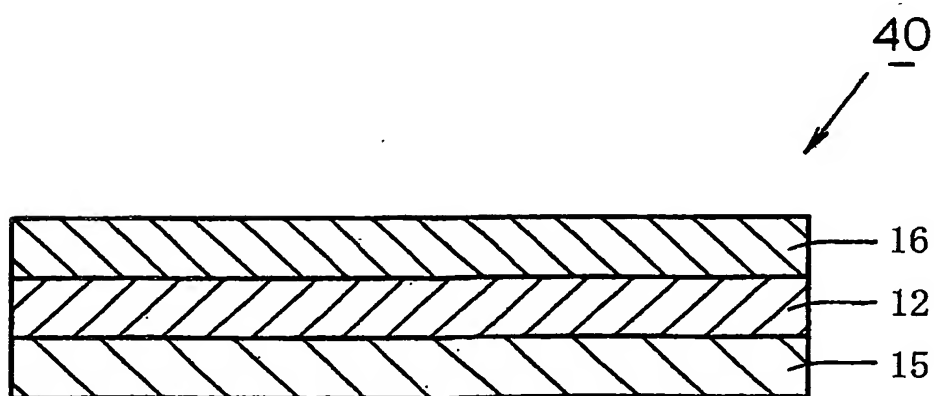
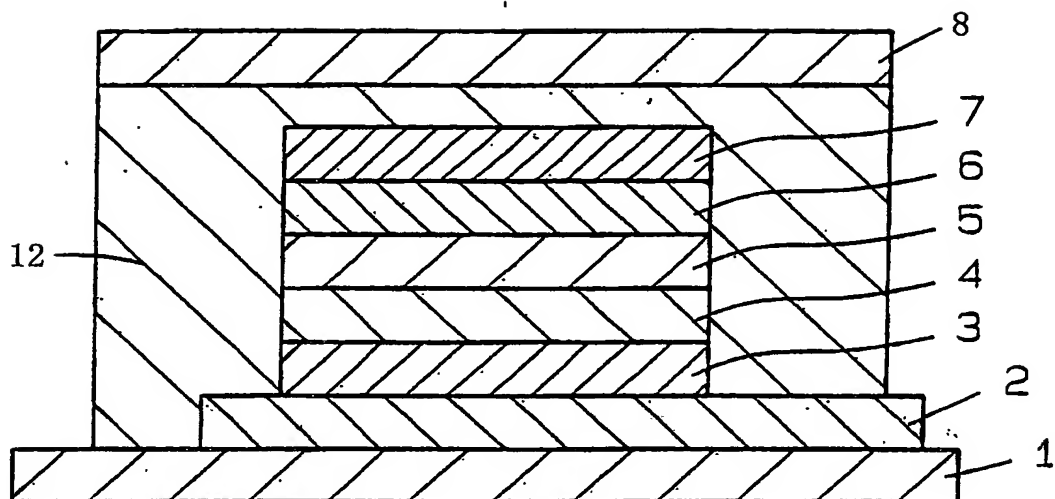


図 1 1



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/07637

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09J201/00, C09J163/00, C09J11/06, C09J7/00, C09K3/10,  
H05B33/04, H05B33/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09J201/00, C09J163/00, C09J11/06, C09J7/00, C09K3/10,  
H05B33/04, H05B33/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 11-224771 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 17 August, 1999 (17.08.99), Claims; Figs. 1 to 2 (Family: none)	1
X	JP 2000-143939 A (Yuka Shell Epoxy Kabushiki Kaisha), 26 May, 2000 (26.05.00), Claims; Par. Nos. [0001], [0044] (Family: none)	1
X	JP 2000-86989 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 28 March, 2000 (28.03.00), Claims (Family: none)	1

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
07 October, 2003 (07.10.03)

Date of mailing of the international search report  
28 October, 2003 (28.10.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP03/07637

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 11-335641 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 07 December, 1999 (07.12.99), Claims (Family: none)	1

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/07637

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The matter common to claims 1 to 19 is "an adhesive for sealing an organic electroluminescent element, characterized in that it comprises a compound capable of undergoing a light cationic polymerization and a light cationic polymerization initiator, wherein a curing reaction is started by the irradiation with a light and proceeds also after the blockage of a light as a dark reaction". A partial search has revealed that the above common matter is disclosed in documents described in a separate sheet or could have been easily conceived by a person skilled in the art on the basis of inventions disclosed in the documents, and therefore, involves no novelty or no inventive

(continued to extra sheet)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1

**Remark on Protest** ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/07637

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

step and is not a special technical feature in accordance with PCT Rule 13.2. As it cannot be found that there is another common matter which may be a special technical feature, claims 1 to 19 are not a group of inventions being so linked as to form a single general inventive concept.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> C09J201/00, C09J163/00, C09J 11/06, C09J 7/00,  
C09K 3/10, H05B 33/04, H05B 33/14

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> C09J201/00, C09J163/00, C09J 11/06, C09J 7/00,  
C09K 3/10, H05B 33/04, H05B 33/14

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
日本国登録実用新案公報 1994-2003年  
日本国実用新案登録公報 1996-2003年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 11-224771 A (松下電器産業株式会社) 199 9.08.17, 特許請求の範囲, 【図1】-【図2】 (ファミリーなし)	1
X	JP 2000-143939 A (油化シエルエポキシ株式会 社) 2000.05.26, 特許請求の範囲, 段落【0001】, 【0044】 (ファミリーなし)	1
X	JP 2000-86989 A (積水化学工業株式会社) 200 0.03.28, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07.10.03

国際調査報告の発送日

28.10.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

橋本 栄和

4V

8620

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

## C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 11-335641 A (積水化学工業株式会社) 199 9. 12. 07, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1

## 第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-19に共通な事項は、請求の範囲1に記載された「光カチオン重合性化合物と光カチオン重合開始剤とを含有し、光照射により硬化反応が開始し、光を遮断した後にも暗反応で硬化反応が進行する光カチオン重合性接着剤からなることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子封止用接着剤」であるが、部分的調査の結果、上記共通の事項は、別紙に記載された各文献に開示されているか、各文献に開示されている発明から当業者が容易に発明し得たものであるから、新規性及び進歩性を有しておらず、PCT施行規則13.2における特別な技術的特徴であるとはいえない。また、他に特別な技術的特徴となりうる共通の事項が存在するものとも認められないから、請求の範囲1-19が、単一の一般的発明概念を形成するように連関している一群の発明であると認めることができない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求の範囲1

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**